

KEK Proceedings 2007-18

March 2008

M



PF 研究会

X 線位相利用計測の将来展望

Future Prospect of X-ray Phase-Related Measurements

2008年1月17日～18日

高エネルギー加速器研究機構

編集

百生 敦、平野 馨一



High Energy Accelerator Research Organization

High Energy Accelerator Research Organization (KEK), 2008

KEK Reports are available from:

High Energy Accelerator Research Organization (KEK)
1-1 Oho, Tsukuba-shi
Ibaraki-ken, 305-0801
JAPAN

Phone: +81-29-864-5124

Fax: +81-29-864-4602

E-mail: irdpub@mail.kek.jp

Internet: <http://www.kek.jp>

目次

| | |
|---|----|
| 1. 研究会の趣旨 | 1 |
| 2. プログラム | 2 |
| 3. 研究会の概要 | 4 |
| 4. 講演内容 | 7 |
| 「P F の次期光源計画」 | |
| 河田洋 | 8 |
| 「XFEL と位相計測」 | |
| 矢橋牧名 | 10 |
| 「X線スペックルによる誘電体の分極クラスターの観察」 | |
| 並河一道 | 12 |
| 「X線光子相関法のソフトマターへの応用」 | |
| 篠原佑也 | 14 |
| 「X線ビームの波数ベクトル分布とコヒーレンス関数の診断」 | |
| 山崎裕史 | 18 |
| 「硬X線 Young 干渉計を用いた放射光の空間コヒーレンス評価」 | |
| 辻卓也、吉田圭佑、小山貴久、高野秀和、津坂佳幸、籠島靖 | 22 |
| 「コヒーレント EUV スキャタリング顕微鏡による CD 評価」 | |
| 岸本淳生、木下博雄、李東根、浜本和宏 | 25 |
| 「コヒーレント X線回折顕微鏡法の材料科学応用に関する取組み」 | |
| 高橋幸生、古川隼人、久保英人、山内和人、西野吉則、石川哲也、松原英一郎 | 27 |
| 「大きい試料の局所複素透過率を求めるコヒーレント X線回折顕微鏡法」 | |
| 香村芳樹、石川哲也、大東琢治 | 31 |
| 「均一視野ゼルニケ型位相コントラスト X線顕微鏡の開発」 | |
| 竹内晃久、鈴木芳生、上杉健太郎 | 35 |
| 「マルチ keV X線位相差顕微鏡への展開」 | |
| 星野真人、渡辺紀生、青木貞雄 | 39 |
| 「タルボ効果を利用した高分解能 X線位相イメージング」 | |
| 武田佳彦、高倉樹、鈴木芳生、竹内晃久、百生敦 | 43 |
| 「X線微分位相顕微鏡による骨微細構造の解析: ツチ骨における骨細胞、骨細管と微小血管」 | |
| 佐野元市郎、南郷脩史、久保田省吾、武田 佳彦、百生敦、松尾光一 | 46 |
| 「X線暗視野法による屈折型トモシンセシスの現状」 | |
| 島雄大介、国定俊之、杉山弘、安藤正海 | 49 |

| | |
|---|----|
| 「X線顕微干涉計による高感度・高空間分解能位相イメージング」 | |
| 小山貴久、辻卓也、吉田圭佑、高野秀和、籠島靖 | 52 |
| 「軟X線フーリエ変換ホログラフィ」 | |
| 小野寛太 | 56 |
| 「X線ホログラフィーで判る半導体材料における特異な局所構造」 | |
| 林好一 | 58 |
| 「硬X線結像ホログラフィー顕微鏡」 | |
| 鈴木芳生、竹内晃久 | 60 |
| 「ゾーンプレート硬X線干涉顕微鏡による3次元位相トモグラフィー」 | |
| 渡辺紀生 | 64 |
| 「コヒーレントX線回折顕微法の生物応用」 | |
| 西野吉則 | 67 |
| 「硬X線 Sub-10nm ビーム形成のための集光波位相計測」 | |
| 山内和人 | 70 |
| 「位相コントラストX線イメージング法による南極氷コア中のエアハイドレートの可視化と定量解析の試み」 | |
| 米山明男、竹谷敏 | 72 |
| 「Atherosclerotic Plaque Imaging using Phase-contrast X-ray Computed Tomography」 | |
| M. Shinohara, T. Yamashita, H. Tawa, M. Takeda, N. Sasaki, T. Takaya, R. Toh, A. Takeuchi, T. Ohigashi, K. Shinohara, S. Kawashima, M. Yokoyama, K. Hirata, A. Momose | 76 |
| 「X線 Talbot 干涉計の実用化に向けて」 | |
| 百生敦、武田佳彦、矢代航、野田大二、服部正 | 78 |
| 「X線屈折コントラスト法によるチタン中の水素の拡散係数の決定」 | |
| 水野薫、岡本博之 | 82 |
| 「X線 HARP 検出器の位相型イメージングへの応用」 | |
| 平野馨一 | 86 |
| 参加者リスト | 90 |

1. 研究会趣旨

X線の位相利用、あるいは、コヒーレンス利用は、放射光源の発展に伴って、さらなる広がりが見込まれる主要な研究対象であり、様々な分野でのサイエンス・テクノロジーへの寄与は計り知れません。PF懇談会の位相計測グループが中心となり、平成14年秋および平成17年春にはこの分野に焦点を絞った研究会を開催し、それまでには無かった角度からの有意義な議論を行いました。その後も多くの成果が報告され、次世代光源計画の動きも相俟って、研究の裾野は今後も確実に広がってゆくものと期待されます。同時に当該分野の計測技術を活用した応用研究も実施される段階に入っています。本研究会では、最新の情報交換と、将来に向けた活発な議論の場を提供します。

2. プログラム

1月17日(木)

10:30 開会の挨拶

10:35-11:00 PFの次期光源計画について

河田洋 (KEK・PF)

11:00-11:25 XFELと位相計測

矢橋牧名 (理研・XFEL)

11:25-11:50 X線スペckルによる磁性体・誘電体の微細構造の観察

並河一道 (東京学芸大学)

11:50-12:15 X線光子相関法のソフトマターへの応用

篠原佑也 (東京大学)

(昼食)

13:15-13:40 X線ビームの波数ベクトル分布とコヒーレンス関数の診断

山崎裕史 (JASRI)

13:40-14:05 硬X線 Young 干渉計を用いた放射光の空間コヒーレンス評価

辻卓也 (兵庫県立大学)

14:05-14:30 コヒーレントEUVスキヤタリング顕微鏡によるCD評価

岸本淳生 (兵庫県立大学)

(休憩)

14:45-15:10 コヒーレントX線回折顕微法の材料科学応用に関する取り組み

高橋幸生 (大阪大学)

15:10-15:35 試料中の局所透過率を求めるコヒーレントX線回折顕微法

香村芳樹 (理研播磨)

15:35-16:00 均一視野ゼルニケ型位相コントラストX線顕微鏡の開発

竹内晃久 (JASRI)

16:00-16:25 マルチ keV X線位相差顕微鏡への展開

星野真人 (筑波大学)

(休憩)

16:40-17:05 タルボ効果を利用した高分解能X線位相イメージング

武田佳彦 (東京大学)

17:05-17:30 X線微分位相顕微鏡による骨微細構造の解析

松尾光一 (慶応義塾大学)

17:30-17:55 X線暗視野法による屈折型トモシンセシスの現状

島雄大介 (茨城県立医療大)

(懇親会@クランベリー)

1月18日(金)

9:00-9:25 X線顕微干涉計による高感度・高空間分解能位相イメージング
籠島靖(兵庫県立大学)

9:25-9:50 軟X線フーリエ変換ホログラフィ
小野寛太(KEK・PF)

9:50-10:15 X線ホログラフィーで判る半導体材料における特異な局所構造
林好一(東北大学)

10:15-10:40 硬X線結像ホログラフィー顕微鏡
鈴木芳生(JASRI)

(休憩)

10:55-11:20 ゴーンプレート硬X線干涉顕微鏡による3次元位相トモグラフィー
渡辺紀生(筑波大学)

11:20-11:45 コヒーレントX線回折顕微法の生物応用
西野吉則(理研播磨)

11:45-12:10 硬X線 Sub-10nm ビーム形成のための集光波位相計測
山内和人(大阪大学)

(昼食)

13:10-13:35 位相コントラストX線イメージング法を用いた南極氷コア中のエアハイドレートの可視化と定量解析の試み
米山明男(日立製作所)

13:35-14:00 位相差X線CTを用いた動脈硬化プラークの評価-不安定プラーク検出の試み
篠原正和(神戸大学)

14:00-14:25 X線 Talbot 干涉計の実用化に向けて
百生敦(東京大学)

(休憩)

14:40-15:05 X線屈折コントラスト法によるチタン中の水素の拡散係数の決定
水野薫(島根大学)

15:05-15:30 X線 HARP 検出器の位相型イメージングへの応用
平野馨一(KEK・PF)

15:30-16:00 全体討論・閉会

3. 研究会の概要

本研究会は、平成 20 年 1 月 17 日（木）、18 日（金）の二日間にわたり、KEK、4 号館 セミナーホールにて開催いたしました。X線位相利用計測の研究会は、平成 14 年秋の「X線位相利用計測における最近の展開」（KEK-Proceedings 2002-22）および平成 17 年春の「X線位相利用計測における最近の展開Ⅱ」（KEK-Proceedings 2005-6）に続いて約 2.5 年周期で 3 回目をかぞえます。今回は、講演者 26 名を含め、これまでで最も多い 70 名の方々の参加をいただき、最新の成果報告と活発な議論が交わされました。以下に本研究会の内容を振り返ります。

ERL や XFEL といった次の光源（河田氏、矢橋氏）を用いるサイエンスにおいて、コヒーレンス活用は常に強調される側面です。並河氏および篠原氏の X線スペックルの活用、あるいは X線格子相関法、は X線源の発達に伴い強力に推進すべき分野だと感じます。特に高輝度化が進んで時間軸方向の早い相関が見られるようになれば、物質のダイナミクス研究に有効なアプローチとなるでしょう。

X線源の発展にはコヒーレンス評価技術の発展も伴う必要があります。今回、山崎氏および辻氏よりそれぞれ新しい取り組みが示されました。

コヒーレント回折顕微鏡は次世代光源を活用する手法の目玉として世界中で精力的な研究が進められています。本研究会でも回毎に講演数が増え、今回は 4 人の方（岸本氏、高橋氏、香村氏、西野氏）に最新の成果を発表いただきました。生体組織やナノ材料への応用が増える一方、手法としての高度化が進んでいます。

結像型の X線顕微鏡開発においても、位相コントラスト化が様々な方法で図られています。ゼルニク型（竹内、星野）、干渉顕微鏡（籠島、鈴木、渡辺）、Talbot 型（武田）といったバリエーションが報告されました。また、位相トモグラフィによる三次元観察がどの手法においても試みられるようになってきていることには注目されます。松尾氏から骨組織観察に関する応用成果が報告されましたが、今後多くの応用展開を期待したいところです。

X線顕微鏡における極限的な空間分解能を狙った光学素子の開発も活発です。本研究会では山内氏より文字通りのナノビーム形成を目標としたミラー製作の現状を紹介いただきました。ミラーの形状誤差を X線位相計測で測定し、それを形状補正にフィードバックする技術は驚異的であり、位相計測から位相制御への展開として注目されます。

今回、かなりの講演が硬 X線領域のものでしたが、小野氏から円偏光軟 X線フーリエ変換ホログラフィの研究計画について BESSY での実験参加を含めて紹介がありました。この領域では我が国は遅れを取っており、光源問題が大きく影響していると思いますが、軟 X線領域位相利用計測技術の挽回が急がれます。

林氏には毎回蛍光 X線ホログラフィの成果を報告いただいております。半導体試料において新しい応用成果が紹介されました。今後の展開が期待されます。結晶干渉計やアナライザ結晶を使う方法などの位相コントラストイメージング（顕微鏡以外）も早い時期から開発

が進められてきたこともあり、エアハイドレート（米山氏）、動脈硬化プラーク（篠原氏）、Ti 水素化物（水野氏）、軟骨診断（島雄氏）をはじめとして、本研究会では取り上げることができなかった他の多くの成果も含め、応用フェーズの研究が増えてきています。

「位相利用計測」は「コヒーレンス利用計測」とは同義ではないと思っております。すなわち、必ずしもコヒーレンスが高くないX線を活用する「位相利用計測」も重要です。究極的には、百生が報告したX線 Talbot 干渉計の実用化計画のように、コンパクトなX線源による位相計測／位相イメージングへの波及も「位相利用計測」発展のひとつの方向だろうと思います。

最後に平野が紹介したX線 HARP は、位相イメージングに限らず広くX線画像科学に寄与する高感度検出器として期待されています。光源・手法・検出器が三位一体となって位相利用計測が発展するとすれば、どうも検出器発展の話題が少ないと個人的には感じています。感度、空間分解能、視野（画素数）、スピード等、今後の発展に強く期待を寄せるところです。

1 日目に降った初雪が残る中、寒さも疲れも忘れるほど興味深い講演と討論が続き、有意義な2日間であったと思われれます。これまでを上回る数の方々が参加くださり、主催側としてあらためて感謝申し上げます。2 年半周期だとすれば平成 22 年の秋に第4 回目を開催できればと思いますが、それを前倒ししたくなる程にこれまでに増してこの分野が活況を呈することを期待します。

最後になりますが、講演いただいた先生方、サポートや会場の準備などにご協力くださった P F 秘書室の皆様、および、東大・百生研究室のスタッフ・学生に、この場を借りて深く感謝申し上げます。

（東京大学大学院新領域創成科学研究科 百生 敦）

（物質構造科学研究所 平野馨一）



開会



講演の様子



熱心な聴衆



懇親会



活発な質疑応答

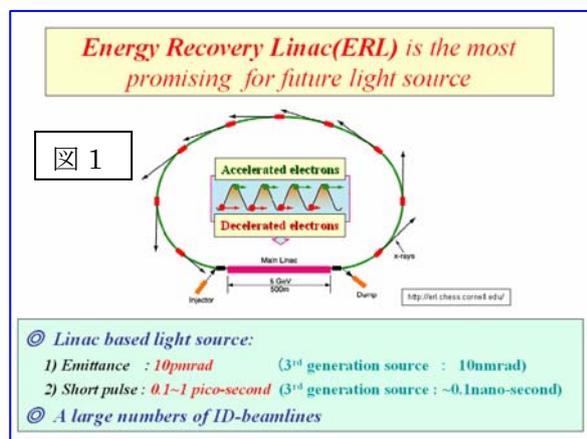
4. 講演内容

PF の次期光源計画

高エネルギー加速器研究機構、ERL 計画推進室 河田洋

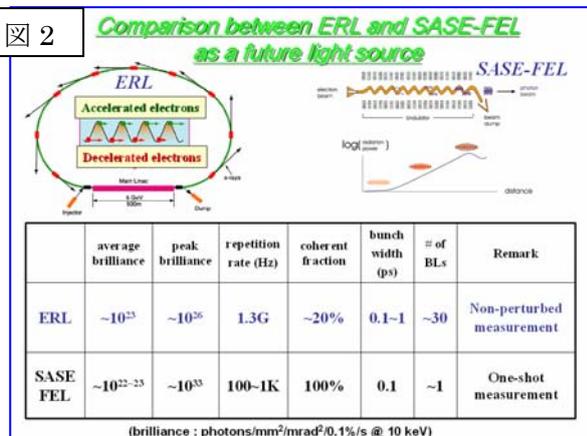
一昨年、Photon FactoryではERL(エネルギー回収型直線加速器)を次期光源とする方針を定め、昨年度より高エネルギー加速器研究機構(KEK)内にERL計画推進室を設置した(<http://pfwww.kek.jp/ERLoffice/index.html>)。この推進室では、KEKの加速器研究施設、原子力研究開発機構、東京大学物性研究所、UVSOR、SPring-8等の加速器研究者との協力体制を築き共同でERL実現に向けた計画の検討を進めています。

ERLは図1に示すようにリング形状はしているものの、基本的にリニアックベースの光源です。その結果、電子ビームのエミッタンスは第3世代光源と比較して2~3桁の飛躍を与える $10\text{pm}\cdot\text{rad}$ を、また電子バンチの時間幅も $0.1\sim 1$ ピコ秒が実現し、第3世代放射光源では困難な先端的研究が可能となる。具体的な電子ビームのエミッタンス($10\text{pm}\cdot\text{rad}$)は、X線領域の光自身が持つエミッタンス($\lambda/4\pi$)と肉薄するエミッタンスである。その結果、ERLからの放射光はX線領域でも10~20%のコヒーレントフラクションを有しており、本研究会の主題であるX線イメージングにおいて多大な貢献を果たすことが出来ることが期待される。一方、現在、理研を含めてSLAC、DESYで進められているX-FEL(SASE-FEL)計画と比較すると、図2のようにまとめられる。平均輝度の観点からはERLとSASE-FELはほとんど変わらないかむしろERLの方が高くなる。著しい違いはそのピーク輝度と繰り返し周波数の違いである。



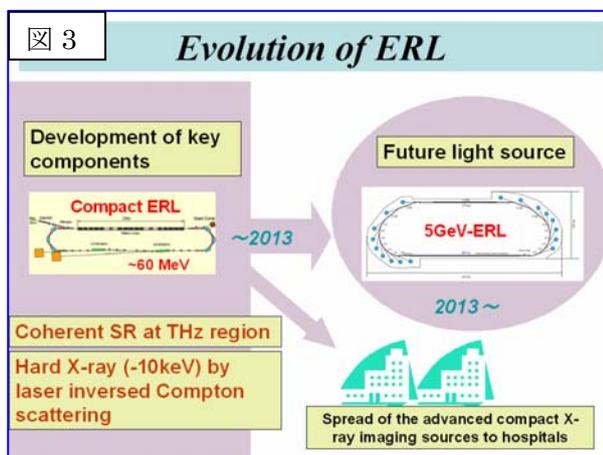
SASE-FELでは繰り返し周波数は $100\sim 1\text{kHz}$ であり、ピーク輝度は 10^{33} を超えるものとなる。この光源は正にシングルショットの実験を可能とし、マルチショットが困難な物質科学の展開さらには想像を絶する励起状態の実現に関して非常に有用と期待される。一方、ERLは 1.3GHz の繰り返し周波数であり、完全なCW光であり、その結果ピーク輝度は 10^{26} という従来の第3世代光源と比較して3桁の飛躍に留まります。しかし、このことは測定する試料物質に深刻な影響を

当てることなく第3世代光源と同様にマルチショットをベースにして、試料環境を十分にコント

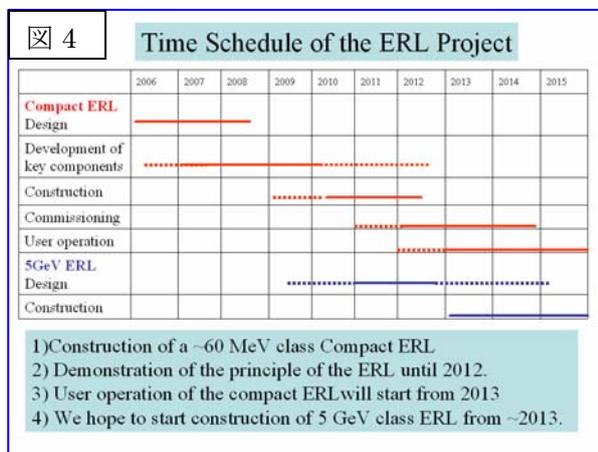


ロールした物質科学の局所的、および短時間のダイナミクスといった先端的研究の展開が可能となる。

上記の 5GeVクラスのERLを実現するに当たり、KEKでは段階的な戦略を立てて進めている。ERLには高輝度大電流を発生させる電子銃、エネルギーを回収する超伝導加速空洞等の加速器要素技術開発が必須である。そこで図 3 に示すように、~60 MeV程度の加速エネルギーの「コンパクトERL」の設計、および建設を先ず進め、加速器要素技術開発、ERLの



原理実証を行いながら、そのマシンで特徴あるサイエンスを展開する。コンパクトERLのサイエンスに関しては、短パルス電子バンチから発生するコヒーレント放射光による大強度THzを利用した研究、およびレーザー逆コンプトン散乱X線を用いたX線イメージングの応用研究、フェムト秒X線を用いた研究等が上げられ、7月9日、10日に研究会「コンパクトERLが拓く世界」(http://pfwww.kek.jp/pf-seminar/ERL/ERL_07July.html)で議論を頂いた。一方、コンパクトERLの設計に関しては、そのCDRが3月にまとめられ(KEK Report 2007-7, JAEA-Research 2008-032, <http://ccdb4fs.kek.jp/tiff/2007/0724/0724007.pdf>)、詳細はそちらを参照願いたい。すでに具体的な要素技術開発に関して、超伝導空洞の試作、電子銃の構築等が進みつつあり、図4のスケジュール表にあるように、2009年にはコンパクトERLの建設場所である東カウンタホールの撤去作業を開始し、2010-2011年には加速器建設、2012年にはテスト運転を開始し、2013年にはテスト実験も開始したいと考えている。一方、5GeVクラスのERLに関してはこのコンパクトERLのテスト運転によって要素技術開発を終了させ、建設に取り掛かる予定である。もちろん、その5GeVクラスのERLに関するサイエンスのブラッシュアップは重要なテーマであり、「ERLサイエンス研究会1」(<http://pfwww.kek.jp/pf-seminar/ERL/ERLScience1/index.html>)を皮切りに、順次進めていく予定である。



このコンパクトERLのテスト運転によって要素技術開発を終了させ、建設に取り掛かる予定である。もちろん、その5GeVクラスのERLに関するサイエンスのブラッシュアップは重要なテーマであり、「ERLサイエンス研究会1」(<http://pfwww.kek.jp/pf-seminar/ERL/ERLScience1/index.html>)を皮切りに、順次進めていく予定である。

XFEL と位相計測

矢橋 牧名

理研 X線自由電子レーザー計画推進本部 利用グループ

Self-Amplified Spontaneous Emission (SASE) 型の自由電子レーザー (FEL) は、光共振器や非線形媒質なしで動作するレーザーとして、EUVから軟X線、硬X線にかけた短波長領域への適用がかねてより期待されてきたが、近年の加速器・光源技術の進歩により、実現可能性について技術的な裏付けが得られた。これを受けて、現在、XFELの建設プロジェクトが現在世界各国で進められている。米国SLACにおけるLCLS、ドイツDESYにおけるEuropean-XFEL、そして日本のSPring-8におけるプロジェクトである。XFELは、バイオ試料等の非結晶体に対するナノメートル分解能の顕微鏡、 $10^{22}\text{W}/\text{cm}^2$ を超える強光子場のソース、外部レーザーとの同期による反応過程のフェムト秒分解能トレースといった、多様な分野への応用が期待されている。

SPring-8のXFEL計画は、国家基幹技術として位置づけられている。理化学研究所と(財)高輝度光科学研究センターから構成されるX線自由電子レーザー計画合同推進本部によって、2006年度から2010年度の5年間にわたる建設が進められている。この装置の特徴は、諸外国に比べて極めてコンパクトであるということである。このコンパクトXFELのフィージビリティスタディのため、2005年、SCSS試験加速器が建設された。2006年6月には初のレーズングを観測し、2007年の9月には波長51~61 nmにおいて飽和を確認した。EUV領域においては、波長を連続かつ迅速にチューンできる世界初の光源である。今後、高輝度EUV光源として様々な利用研究に供される予定である。

SASE-FELの発生のためには、線形加速器で加速された高エネルギー・高輝度の電子ビームと、アンジュレータが用いられる。まず、電子ビームがアンジュレータに入射され、放射光を発生する。個々の電子分布の初期状態はランダムであるため、発生する放射光もインコヒーレントである。しかしながら、電子ビームは、放射光とのエネルギーの授受を通して、光の波長に相当する密度変調を形成する。電子・放射場の相互作用は小さいため、この過程の立ち上がりは緩慢であるが、一旦この密度変調が生成されると、そこから発生する放射光の強度は増大し、さらに深く密度が変調される。このように、放射場の強度と密度変調は、相互作用長(アンジュレータ長)に対し指数関数的に増大する。最終的に、両者のエネルギーの授受はバランスがとれ、放射強度は飽和に至る。

このようにして得られるSASE-FELは次のような特性をもつ。

- ①: 高いピークパワー・ピーク輝度
- ②: コヒーレンス
- ③: サブピコ秒領域の短パルス

①: 飽和の際の放射場と電子ビームとのパワーの比は、ピアスパラメータ ρ という値で表され、典型的には、 $\rho \sim 10^{-4}$ 程度である。電子ビームのパワーは、 $10\text{ GV} \times 3\text{ kA} = 30\text{ TW}$ 程度であるため、放射場のピークパワーとしては $\sim 10\text{ GW}$ という値になる。これは、世界最高の輝度を誇るSPring-8の25mアンジュレータビームラインと比べて、4桁以上高い値となっている。また、ピーク輝度としては、 $10^{32}\text{ photons/s/mm}^2/\text{mrad}^2/0.1\% \text{ b.w.}$ という値が得られるが、これは、8桁以上も高い値である。

②: SASE-FELが飽和に達すると、回折限界光が実現される。この特性は、コヒーレント散乱イメージングや、スリットレス極限集光による強光子場の生成に活かされる。一方、フーリエ限界は達成されていない。例えば、時間コヒーレンス長はおおよそ λ/ρ のオーダーであり、 $\lambda = 0.1\text{ nm}$ 、 $\rho = 10^{-4}$ とすると、 $\sim 1\text{ }\mu\text{m}$ となる。パルス幅は $30\text{ }\mu\text{m}$ (100 fs)前後であるため、時間的には数十以上のモードをもつ多モード光源とみなすことができる。フーリエ限界光源を実現するためには、SASE方式のようなショットノイズからの立ち上がりではなく、あらかじめ電子に密度変調を刻み込んでおくことが考えられる。これを実現するためのシードFEL等の技術開発は、今後の大きな発展が期待されている。

③: 短パルス放射の源は、高密度にするためにピコ秒程度にバンチ圧縮された電子ビームである。ここで、バンチの全体がレーズングに寄与するわけではなく、高いピークカレントと低いエミッタンスをも

つ、バンチの一部が放射に関わっている。その結果、100 fs 程度の短いパルスが放出される。様々な応用に当たっては、パルス長をさらに 10 fs 以下に圧縮できないかという要請が強く寄せられている。このためには、シード FEL や、電子バンチのごく一部をスリットで切り出すといった、加速器技術に基づく手法とともに、グレーディッド多層膜等を利用した X 線光学技術に基づく手法が検討されている。

SPring-8 における XFEL は、全長をなるべくコンパクトにして、効率よく短波長を発生できるように設計された。実験ホールを含む全長は 700 m に抑制されており、これは、LCLS や European-XFEL と比して数分の 1 のサイズになっている。

図 1 に基本構成を示す。入射部と C バンド主加速器部は、全長約 400 m のマシン収納部建家に設置される。アンジュレータは、光源収納部建家に配置される。将来的には 5 本のビームラインが設置可能であり、スイッチングマグネットによってビーム輸送の切替がなされる。第 1 期としては、中央の XFEL ビームラインと、端の広帯域ビームラインの 2 本が設置される。電子ビームは光源収納部最下流の 8 GeV ビームダンプに廃棄され、XFEL 放射は実験棟に輸送される。実験棟内に X 線光学系が置かれ、ガンマ線とのビーム分離、分光、集光といったビーム操作がなされる。また、ポンプ・プローブ実験用のレーザーも実験棟内に設置される。

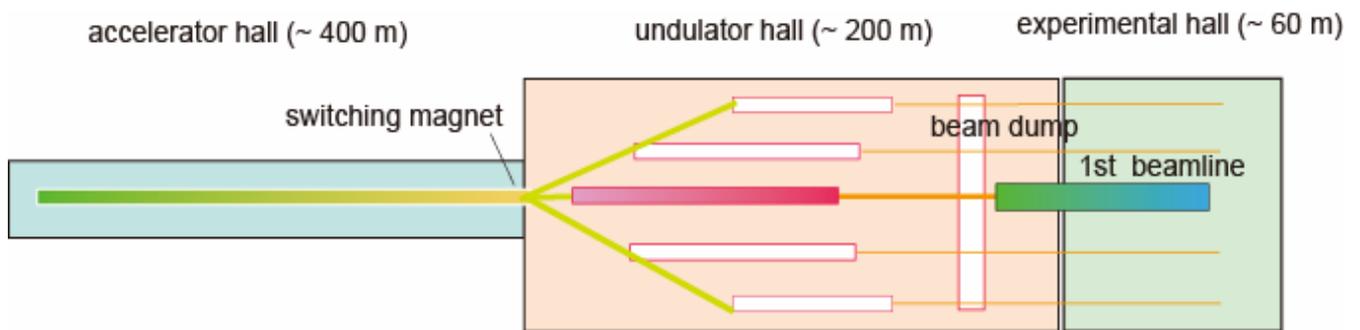


図 1 XFEL 装置の基本構成

SCSS 試験加速器は、250 MeV の加速エネルギーをもつ、全長 60 m の加速器である。加速エネルギーは実機と比べて 32 分の 1 であり、C バンド加速管、アンジュレータはそれぞれ 2 ユニットずつと、コンポーネントの数量は少ないが、入射部や RF、モニター等、実機に使用される基本コンポーネントは全て組み込まれている。2006 年 6 月のファーストレージング^(6,7)に引き続き、制御・モニター系の整備が行われた。2007 年 3 月には、利用実験のために EUV レーザー実験棟が完成し、5 月に輸送系ビームラインの整備が行われた。7 月から 8 月にかけて、ビームの安定性の改善が図られ、同時にアンジュレータの磁場補正が行われた。9 月に、アンジュレータ 2 台を使った本格的な調整が行われた。この結果、波長 51~61 nm で、SASE 出力の飽和を達成した。最大パルスエネルギーは約 30 μJ であり、加速器・光源が設計通りの性能を有していることが明確に確認された。今後は、XFEL 光源に関する技術開発を継続するとともに、様々な実験への応用が期待されている。

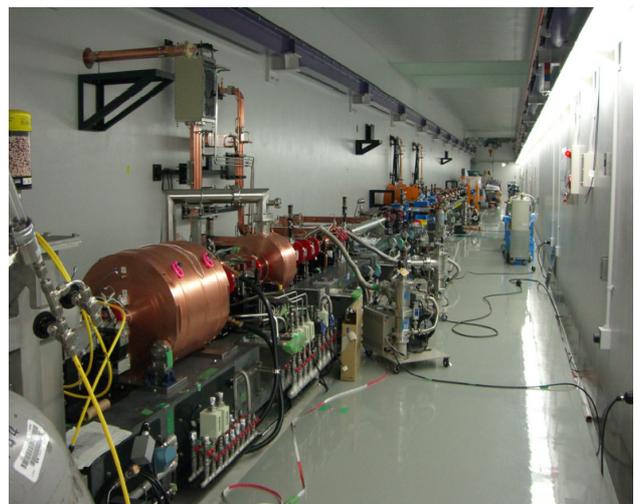


図 2 電子銃側からみた試験加速器

X線スペckルによる誘電体の分極クラスターの観察

並河一道

東京学芸大学、日本原子力研究開発機構、科学技術振興機構 CREST

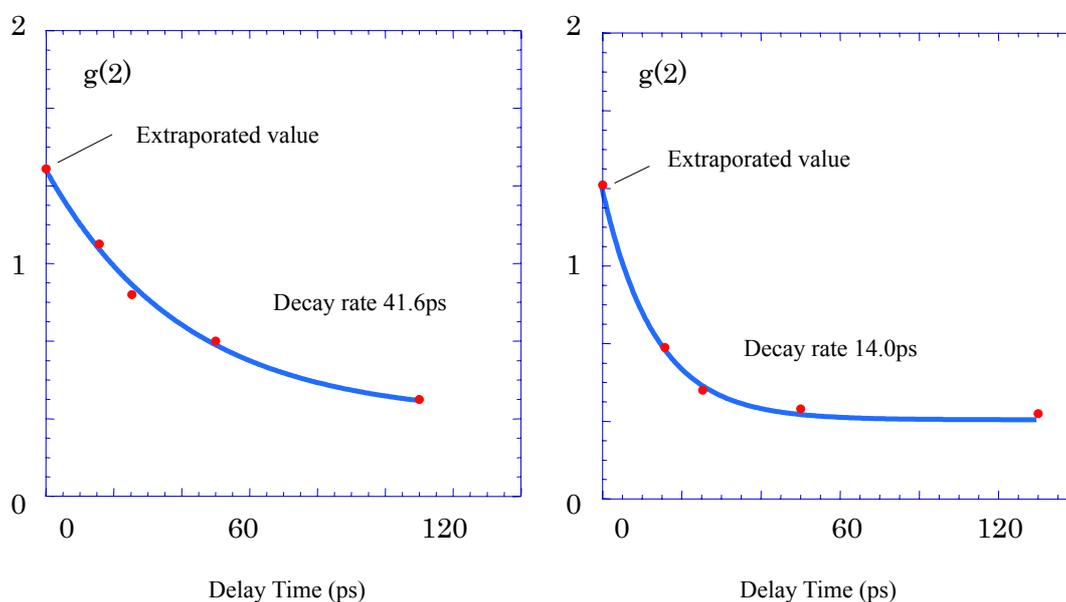
誘電体の分極ドメインや分極クラスター、磁性体の磁区、銅酸化物高温超伝導体の電荷ストライプなどのナノサイズの2次構造は、応用の観点からも基礎の観点からも物質科学の重要な階層と位置づけられている。なかんずく、これらの動的ふるまいは物性発現の鍵を握る極めて重要な結節点である。これらの2次構造は、電子顕微鏡を始めとする各種の顕微法、X線・中性子散乱、ラマン分光、NMRなどの手法を用いて研究されてきた。なかでも、放射光X線による構造物性に対する貢献は特筆するに価する。しかしながら、これまで行なわれてきたナノサイズの2次構造に関する研究の多くは空間的・時間的な平均構造に関するもので、空間的・時間的な局所構造を明らかにするような研究は極めて少なかった。

しかし、最近の高輝度光源の出現によって、今日では固体による干渉性散乱が観察できるようになり、誘電体や磁性体を対象としたスペckルの観察がおこなわれ、これらの物質の空間的・時間的なスペckル像のゆらぎに関する知見が得られるようになってきた。しかしながら、高輝度光源といえども、放射光X線の空間コヒーレント成分は極めて小さく、ビームの 10^{-3} 程度しかなく、最低 $10\mu\text{m}$ 程度の入射スリットを使う必要があり、1パルス当たりの光子数は 10^6 程度のものである。したがって、放射光によるダイナミックスの研究は $100\mu\text{s}$ 程度が限界である。これに対し、プラズマ基盤の軟X線レーザーは、繰り返しが15分に1ショットではあるものの、空間コヒーレント成分はビームの80%以上もあり、1パルス当たりの光子数は 10^{10} 程度もある。この光源によると 10ps 弱の分解能でダイナミックスの研究を実行することができる。

コヒーレントなX線が不均一な構造をもつ物質に入射したとき、それぞれの散乱体によって散乱されたX線は互いに干渉し合い複雑な干渉像を形成する。フラウンホーファー近似が成り立つ場合、この干渉像はスペckルと呼ばれ、スペckルの空間構造には入射X線のビームサイズ、散乱体の大きさおよび散乱体間距離を反映した特徴が現れる。スペckルの広がりや範囲を決めるものは、散乱体の大きさであり、形状因子の広がりやその目安となる。形状因子は散乱体の大きさに逆比例して散乱体の各部分からの散乱波の位相の不整合の度合いを表す。散乱体間距離はスペckルの構造を決める要因であり、散乱体の分布の様子がスペckル像(模様)に反映される。これらの構造的因子はそれぞれの散乱体ごとに異なるスペckルの要素であるのに対し、スペckルの斑点模様のサイズを決める因子は実験条件ごとに異なるスペckルの要素である。スペckルの斑点模様のサイズはX線の照射領域の大きさに反比例し、試料と観察位置の距離に比例する。スペckル強

度は、散乱体の密度相関関数と入射スリットの窓関数の積のフーリエ変換によって与えられるので、密度相関関数は、スペックル強度のフーリエ積分と入射スリットによる回折強度のフーリエ積分の比で与えられる。密度相関関数はパターンソン関数と同じもので、相対距離の関数として散乱体の出現の頻度を与えるものである。

プラズマ基盤の軟 X 線レーザーを用いて BaTiO₃ の分極クラスターのスペックルが観測された。スペックルは、分極クラスターの複屈折に起因するもので、分極クラスターは位相散乱体として働いている。観測された密度相関関数から分極クラスターのサイズ、クラスター間距離および分極の大きさの温度依存性に関する知見が得られた。クラスターサイズは温度によってほとんど変化しないが、クラスター間距離は温度が転移温度に近づくと線形で小さくなり、分極の大きさは温度が転移温度に近づくと温度に比例するように大きくなり、転移温度の 5 度高温側で極大をとり、これより温度が下がると再び小さくなることなどが分かった。このような分極クラスターの温度依存性に関する知見は BaTiO₃ の相転移の機構を論ずる上で欠かすことの出来ない情報であるが、静的特性に関する知見とともに重要な情報は動的特性に関するものである。ビームスプリッターとマイケルソン型の遅延光路によって時間差のあるダブルパルスビームを生成し、スペックルの強度相関を測定して分極クラスターの緩和の特性時間を求めた。下図のように緩和の特性時間の温度依存性が調べられるようになった。



ここで紹介した BaTiO₃ の分極クラスターの研究例*からも X 線スペックルが誘電体や磁性体などのナノサイズに固有の構造とそのダイナミクスを解明する上で極めて有力な手法であることが分かる。今後、X 線自由電子レーザーやエネルギー回収型ライナックなどの強力なコヒーレント光源の実現によって空間的にも時間的にもその適用領域が広がっていくであろう。*Tai RenZhon (SINAP), 岸本牧(JAEA)らとの共同研究による。

X線光子相関法のソフトマターへの応用

Application of X-ray Photon Correlation Spectroscopy to Soft Matter

篠原 佑也 (SHINOHARA Yuya) *

January 17, 2008

1 はじめに

高分子やコロイド分散系などのソフトマターは、ナノメートルからミリメートルまで幅広い構造の階層性を有し、その各階層の力学的特性・ダイナミクスを反映して、複雑で多様な巨視的力学物性を示す複雑流体の代表的なものになっている。各階層の構造については種々の顕微鏡観察や、X線や中性子による散乱観察により研究が進められている。従来の散乱法ではインコヒーレントな光を積極的に利用し、平均構造を測定対象としてきたが（そしてソフトマターの場合にはそれで十分な場合が多いのであるが）、コヒーレントなX線を用いた小角散乱を行うことにより、複雑な階層構造を可視化できることが期待される。

一方、ダイナミクスについては、従来は可視光レーザーを用いた動的散乱法（光子相関法）を用いた希薄系の研究が行われてきたが、近年、特に局所的なダイナミクスを測定するマイクロロロジー（microrheology）と総称される手法が発展してきた¹。この中には、前述の動的散乱や、粒子の熱運動やレーザーピンセットによる運動への応答を測定する粒子追跡法などが含まれている。しかしこれらの手法は適用できる系が限られており、特にプローブ粒子以外の媒質による回折が起こる際には適用が困難である。それに対して、コヒーレントX線を光源とするX線光子相関法（X-ray Photon Correlation Spectroscopy: XPCS）を用いると、「濃厚な」系のダイナミクスを測定することができるため、近年になって積極的に研究が進められている。

ソフトマターへの応用を考えたときには、データ処理の部分は大きく異なるものの、実験配置としてはXPCS測定は（準）コヒーレントなX線を用いた高速時分割小角X線散乱測定に過ぎない。さらに後述の通り、小角散乱領域では回折の経路差が小さ

いため、特に時間コヒーレンスに関する条件が緩い（実際に Pink beam で十分測定が可能である）。それにも関わらず日本国内では実施例がほとんど報告されていない。これは1つには国内の放射光施設にはXPCS用のビームラインがないということが挙げられ、他方ではXPCSに適した試料を対象としている研究者で放射光そのものに明るい人が多くはないため、XPCS実施への敷居が高く、またその認知度が低いことによると考えられる。それに対してAPSやESRFなどの他の第3世代放射光源施設やSLSなどの新しい放射光施設ではXPCS専用ビームライン（あるいはコヒーレント回折ビームライン）が設置されており、ソフトマター研究者や理論統計物理学者へのXPCS実施の敷居が低く、近年ますます研究成果がでてきている。そこで本発表では、まずX線光子相関法の原理、ソフトマター研究における意義について簡単に述べた後、ナノ粒子充填ゴムへの応用例を簡単に紹介する。その過程で明らかになった課題と今後の展望について述べる。

2 X線光子相関法 (XPCS)

ここで簡単にXPCSについて説明する。回折振幅 $E(\mathbf{q}, t)$ の規格化自己相関関数 $g^{(1)}(\mathbf{q}, \tau) = \frac{\langle E(\mathbf{q}, 0)E^*(\mathbf{q}, \tau) \rangle}{\langle I(\mathbf{q}) \rangle}$ と回折強度 $I(\mathbf{q}, t)$ の規格化自己相関関数 $g^{(2)}(\mathbf{q}, \tau) = \frac{\langle I(\mathbf{q}, 0)I^*(\mathbf{q}, \tau) \rangle}{\langle I(\mathbf{q}) \rangle^2}$ との間には理想的な条件下では

$$g^{(2)}(\mathbf{q}, \tau) = 1 + |g^{(1)}(\mathbf{q}, \tau)|^2 \quad (1)$$

という関係式が成り立つ（Siegert の関係）。ここで \mathbf{q} は入射波と回折波の波数ベクトルの差で定義される散乱ベクトルであり、 q はその絶対値である。また、 $\langle \dots \rangle$ は Ensemble 平均である。理想的な系では $g^{(1)}(\mathbf{q}, \tau)$ は系の中間相関関数と同等であり、系の中間相関関数が密度相関関数 $G(\mathbf{r}, \tau) = \langle \rho(\mathbf{0}, 0)\rho(\mathbf{r}, \tau) \rangle / \rho_0$ の時間に関する Fourier 変換であ

*東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻 (〒277-8561 柏市柏の葉 5-1-5) E-mail: yuya@k.u-tokyo.ac.jp

¹T. A. Waigh, *Rep. Prog. Phys.*, **68**, 685 (2005) など

ることから、回折強度揺らぎを求めることで系内部のダイナミクスに関する情報を得ることができるとわかる。たとえば系内部に均一な球形粒子が分散している理想的な系では、粒子の平均二乗変位 $\langle \Delta r^2(t) \rangle$ と系の間中間相関関数の間には

$$g^{(1)}(q, \tau) = \exp(-q^2 \langle \Delta r^2(\tau) \rangle / 6) = \exp(-Dq^2\tau) \quad (2)$$

という関係が成り立ち、Stokes-Einstein の関係式

$$R = \frac{kT}{6\pi\eta D} \quad (3)$$

と併せて (R, η, k, T, D はそれぞれ粒径、溶媒の粘度、Boltzmann 定数、温度、拡散定数である)、粒径分布や拡散定数に関する情報を得ることができる。

2.1 濃密な系への応用

以上は、従来の動的光散乱と全く同じであるが、XPCS で対象としているのは基本的には「濃密な」系なので、上記の関係式を単純に当てはめることができない。そこで現在、様々な解析法が模索されている。マイクロレオロジーの解析法を適用した例として、Laplace 領域での一般化 Stokes-Einstein 関係式

$$\tilde{G}(s) = \frac{k_B T}{\pi R s \langle \tilde{r}^2(s) \rangle} \quad (4)$$

を用いて (慣性項は無視した)、平均二乗変位の情報から系内部の複素粘弾性スペクトル $G^*(\omega)$ を得る方法がある²。ここで \sim がついた量は Laplace 変換した量を表している。この種の解析を XPCS に適用した論文もでていますが、平均二乗変位を求める時点で様々な難点を有することがわかっており³、無批判に用いるのは難しい。

一方、自己相関関数が

$$g^{(1)}(q, t) \sim \exp[-(t/\tau)^p] \quad (5)$$

の形 (p の大小により “stretched” exponential function や “compressed” exponential function と呼ばれる) でフィッティングできることを生かして、理論的な考察から得られた指数 p と実験的に得られた値とを比較することで、系内部のダイナミクスについての知見を得ている論文もある。例えばある種の弾性体媒体では、系の特徴的な時間スケール τ_g に対して小さい領域では $p \sim 3/2$ であることが理論的に⁴、またシミュレーションにより予測されており、それ

と一致する実験結果も得られている。この手法はある程度定量的にダイナミクス解析できるという特長はあるものの、実験で得られた指数から直接にダイナミクス情報が得られるわけではなく、また指数関数によるフィッティングに任意性が大きく残るため、今後さらなる理論整備が必要である。

その他にも心拍の分析などで用いられている De-trended Fluctuation Analysis を用いた方法⁵など、様々な解析手法が実施されている。これは主として、APS や ESRF などにおける XPCS 実験が先端的なものから定常的なものになり、より複雑な系への応用が進んでいるためであろう。それに対して国内におけるソフトマターを初めとした複雑流体を対象とした XPCS は、実験例が少ないということもあり、これまでほとんどその結果が表にでてきていない。これは1つには、比較的实验が容易な XPCS に適した系、即ち、小角散乱領域の回折強度が大きく、かつゆっくりとしたダイナミクスを示す系への応用が少なかったことが挙げられる。また、検出系についても XPCS に適した2次元時分割検出器がなかったことが挙げられる。我々のグループが対象としているナノ粒子充填ゴムは、小角散乱強度が大きく、またゴム中でナノ粒子が比較的ゆっくり動いている。さらに、高分解能かつ時間分解能を有する2次元検出器を所有しているため、XPCS 実験に成功した。そこで次節以降では我々の研究を中心に、SPring-8 における XPCS 実験について、またその課題と今後の展望について述べる。

3 XPCS at SPring-8

3.1 XPCS 測定の要件

実際の測定系の説明の前に、XPCS 測定条件について簡単にまとめる。満たすべき条件としては、(1) 試料位置におけるビームサイズは空間コヒーレンス長よりも小さくなければならない、(2) 異なる経路を通った回折の経路差が、時間コヒーレンス長よりも小さくなるような試料厚み、ビームサイズでなければならない、(3) 検出器の見込み角度分解能が、スペックルよりも小さくなければならない (4) 検出器の時間分解能が、強度の揺らぎの特徴的時間よりも短くなければならない、といったことが挙げられる。各パラメータはビームラインに依存するが、簡単に検討する。まず空間コヒーレンス長については、SPring-8 の中尺ビームラインなどを除いた ID ビームラインで

²T. G. Mason *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 3282 (1997).

³G. J. Phillis, *J. Chem. Phys.*, **122**, 224905 (2005).

⁴J.-P. Bouchaud and E. Pitard, *Eur. Phys. J. E*, **6**, 231 (2001).

⁵L.-M. Stadler *et al.*, *Phys. Rev. E*, **74**, 041107 (2006)

は試料位置で $10\ \mu\text{m}$ 弱であり、数ミクロン径のピンホール挿入により容易に得ることができる。この場合に問題となるのは X 線の強度であり、その点を解決するために我々は BL40XU の Helical undulator からの準単色 X 線を用いている。単色性が悪いと時間コヒーレンス長が短くなるが、小角散乱領域の測定をしている限りは回折の経路差が非常に小さいため、準単色の X 線であっても 2 番目の時間コヒーレンス長に関する条件を比較的容易に満たすことができる⁶。ただし、BL40XU においては通常の小角散乱領域 ($q_{\text{min}} = 0.01\ \text{\AA}^{-1}$ 程度) の測定では不十分で、極小角領域 (たとえば $6 \times 10^{-4}\ \text{\AA}^{-1} < q < 6 \times 10^{-3}\ \text{\AA}^{-1}$) の測定を行う必要があり、小角散乱で古くから Kratky カメラとして知られているような実験配置の工夫が必要である。1, 2 番目は光学系、試料に関する条件であったが、3, 4 番目は検出器に関する条件である。シンチレーションカウンターなどの 0 次元の検出器では窓のサイズを変えることで、検出器側の角度分解能を容易に変えることができる。しかしソフトマターへ XPCS を応用する際には、2 次元検出器を用いる必要がある⁷。この場合には、(i) 空間分解能の高い検出器を用いる、(ii) 試料と検出器との距離を長くとる、の 2 通りの解決法がある。もともと小角散乱を測定する上でカメラ長は長くとっているが、たとえばカメラ長 $3\ \text{m}$ 、波長 $1.2\ \text{\AA}$ 、ビームサイズ $5\ \mu\text{m}$ 程度だと、スペックルサイズは $50 - 70\ \mu\text{m}$ であり、現在小角散乱で用いられている主要な検出器の空間分解能 ($100\ \mu\text{m}$ 程度) だと足りない。したがって特殊な検出器を使用する必要がある。

3.2 Experimental Setting

ここで、我々が SPring-8 にてナノ粒子充填ゴムを対象に行った XPCS 実験について説明する⁸。実験は SPring-8 BL40XU にて実施した。このビームラインはヘリカルアンジュレーターを光源としているため、ピンホール挿入により容易に空間的にコヒーレントな大強度 X 線を得られるが、一方でモノクロメーターを通していないために時間コヒーレンス長は短い。試料より $15\ \text{cm}$ 上流に $3 - 4\ \mu\text{m}\phi$ のピンホールを挿入し、試料位置で数ミクロン径の X 線マイクロビームを生成した。このピンホールからのフ

⁶逆に準単色であるがために、寄生散乱と試料からの回折との間の干渉 (Heterodyne な光散乱) の効果を無視できる。

⁷時間平均と ensemble 平均が一致すると見なせる系ならば 0 次元の検出器で測定して時間平均をとればよい。しかし対象となる試料は空間的に凍結した構造を持っている場合が多いので、多数の散乱角で ensemble 平均をとる操作を行わなければならない。

⁸Y. Shinohara et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46**, L300 (2007)

ラウンホーファー回折や上流からの寄生散乱は、ピンホールと試料との間に別のピンホールを設置することで除いた。試料は LINKAM 社製の温度制御ステージに設置した。試料から $3\ \text{m}$ 程度下流に X-ray Image Intensifier (XRII) と組み合わせた CCD 型 X 線検出器を設置した。ここで用いている XRII は小角 X 線散乱実験などで用いられている従来のものとは異なり、像の縮小機能はついておらず、像の強度増倍のみをおこなう。従って空間分解能を比較的高く保ったまま検出器の実効的な感度を向上させている。XRII と CCD との間のリレーレンズは 3 種類の倍率 ($\times 1, \times 2, \times 0.5$) のものが使用可能であり、必要に応じて視野の変更が可能である。CCD としては浜松ホトニクス社の C4880-80 を用いた。CCD のピクセルサイズは $9.9\ \mu\text{m}$ であるが、XRII での像の広がりにより、実効的な空間分解能は $30\ \mu\text{m}$ 程度である。

我々が測定対象としているのは、カーボンブラックやシリカなどのナノ粒子を分散させたゴムである。本実験では未架橋のスチレンブタジエンゴムを用いている。ナノ粒子を充填することにより、ゴムの粘弾性特性が劇的に変化することは補強効果として古くから知られているが、その起源については未解明な部分が多い。これらのナノ粒子は階層構造を有しており、各階層における構造情報と、具体的なナノ粒子ダイナミクスを知ることが補強効果の起源解明に有用であると考えられている。ゴム内部構造に起因する回折と比べて、ナノ粒子に起因する回折が大きいいため、観測量はナノ粒子のダイナミクスである。

3.3 Typical Results

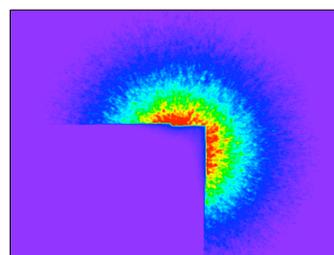


図 1: Typical speckle image.

BL40XU での XPCS 実験で得られる典型的な回折像を図 1 に示す。広角側ではスペックルが鮮明ではないが、これは回折強度が弱いことに加えて、広角側では時間コヒーレンス長よりも回折の経路差が大きいため、XPCS 測定の要件を満たしていないことによる。このような回折像を 1 つの実験条件につ

数千枚測定し、各ピクセルにおける強度揺らぎから情報抽出する。たとえば単一ピクセルでの強度揺らぎだけでも、試料温度により揺らぎの時定数が全く異なる様子が図2からわかる。また、ゴムに硫黄を添加し、温度変化させたときのXPCSを測定することで、ゴム架橋過程のダイナミクス変化を実時間測定することにも成功した。

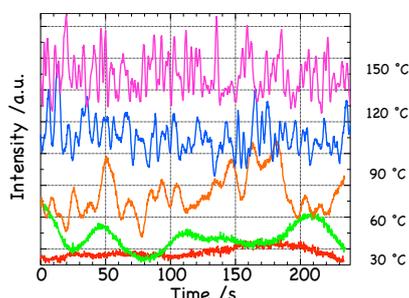


図2: Typical scattering intensity fluctuation at several temperatures.

4 課題と今後の展望

ソフトマターへのXPCS応用において現在最大の問題となっているのは、照射損傷の問題である。通常の小角X線散乱においても照射による試料の温度変化、凝集などは問題となるが、マイクロビームを用いている場合にはその影響が顕著になると同時にわかりにくいため、誤った解釈を導き出す可能性が高い。凝集を起こす場合には、回折像そのものが変化するため判断することができる。実際に我々の実験でもシリカを充填したゴムに関しては、ある一定量以上のX線を照射したときに、散乱像が変化することを確認している。また、その際には強度揺らぎの時定数も変化している。一方カーボンブラック充填ゴムに関しては、これまでの測定で凝集現象は確認されていない。しかし散乱強度揺らぎの時定数は変化している。実際に照射時のあるピクセルによる散乱強度揺らぎをwavelet変換したものを図3に示す。図から明らかなように、時間経過とともに遅い揺らぎ成分の影響が大きくなる。これはX線照射により試料であるスチレンブタジエンゴムが架橋してしまっていると考えられる。これを防ぐためには照射線量を落とすしかない(温度依存性も重要なパラメーターであるので、液体窒素吹きつけなどはできない)ため、現状はX線の強度を落とすとともに、一定時間毎に測定箇所を変えて、照射損傷の影響を最小にしている。

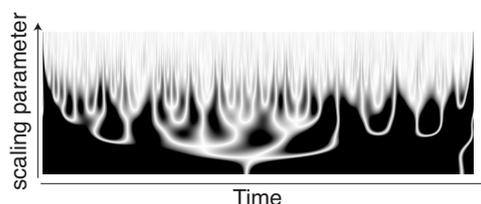


図3: Wavelet transform of time-course of scattering intensity at a pixel.

上記に挙げたような課題を含めて実験上解決すべき問題点は多々あり、また前半で述べたように取得データの取扱には様々な問題点がある。しかしながら得られる情報は他の手法では現在のところ決して得ることのできないものが多く、解析における理論展開と共に今後ますますの発展が見込まれる。FELやERLなどが建設されればコヒーレントなX線はより容易に得られるようになるが、必ずしも直接XPCSの発展につながるわけではない。XPCSの時間分解能は現在は完全に検出器が律速になっているが、たとえばSCSSのパルス周期は60 Hzであるから、単純には光源側の制約により秒オーダーよりもゆっくりとした揺らぎの測定しか行えなくなる。またXPCSは回折強度そのものではなくその揺らぎ量の測定が重要である。そのため読み出しノイズや熱雑音の処理に悩まされる積分型検出器よりは、パルス型検出器の方が望ましいだろうが、coherent fluxが大きくなると同時に数え落としの影響も大きくなるため、結果としてFELやERLから得られるであろう高輝度なX線を減衰させて用いなければならないだろう。また、照射損傷の影響もソフトマターへの応用では非常に大きい。したがってXPCSに関してはコヒーレント回折顕微鏡などと同様「コヒーレントなX線」は重要なキーワードではあるが、coherent fluxの大きな光源の完成を待ち望むよりは、検出器や光学系の発展に注力すべきである。この点でも海外ではXPCS用にpixel検出器を開発するなどされており、現状、日本は遅れている。

謝辞 XPCS実験の際にはJASRIの八木直人、井上勝晶、太田昇の各博士に様々な面で協力していただいた。本研究はSRI研究開発(株)の岸本浩通氏との共同研究である。指導教官であり現在の上司でもある東大の雨宮慶幸教授には、自由に研究を進めることのできる環境を与えていただき、また有益な議論をしていただいた。また、雨宮研の学生には実験・解析を進めてもらった。以上の方々に深く感謝する。

X線ビームの波数ベクトル分布とコヒーレンス関数の診断

(財)高輝度光科学研究センター 山崎 裕史

1 はじめに

ビームの性質を診断し理解することは、光源性能の向上や計測手法の進展を促す契機になりうる。逆に、光源性能の評価や、計測における詳細な解析のために、ビームの情報を取得すべき必要が生ずることもある。最も原始的なビーム診断のパラメータとして、強度、密度、単色性、角度発散などが挙げられる。ビームの性能に合わせて診断項目は詳細になり、強度・密度の拡張として、イメージングによる空間的強度分布計測や、ストリークカメラ等による時間的強度分布(パルス特性)解析などが行われることになる。また、単色性・角度発散を統合すれば、ビームの波数ベクトル分布の診断に拡張される。ビームの位相を積極的に利用する干渉計測手法の進展は、ビームのコヒーレンス特性への関心を抱かせることになる。さらに、量子的なビームが得られた暁には、量子的な情報の取得 (laser beam quality [1]、wavepacket tomography [2] など) に進んでいくことになる。

この流れの中で我々は、X線に対して波数ベクトル分布とコヒーレンス特性の診断手法を確立した。ここではその概略を説明する。詳細は準備中であり、後日改めて紹介したい。

2 X線ビームの波数ベクトル分布の診断

まず、単色性と角度発散を統合して扱う必要があるのかという根本的な問題について検討する。可視光に関して言えば、極めて高い単色性を有する光源が多数あるので、多くの場合、角度発散だけが興味の対象である。非単色光を光学素子を通して分光する場合でも、角度発散にほとんど影響を与えないで単色化することもできる。一方、X線領域では単色性を高めるために結晶を多用するが、結晶による分光の最も基本的な公式であるブラッグ条件 $\lambda = 2d \sin \theta_B$ は波長と角度の関係式になっている。つまり、結晶によって単色化されたX線では、単色性と角度発散はリンクすることになる。

波数ベクトル分布の診断のために、我々は完全結晶によるロッキングカーブ測定を利用することにした。ロッキングカーブとは、入射波の回折格子面に対する視斜角 θ_o を変数とする回折強度曲線のことである(図1)。ロッキングカーブの形状は逆空間(波数ベクトル空間)では以

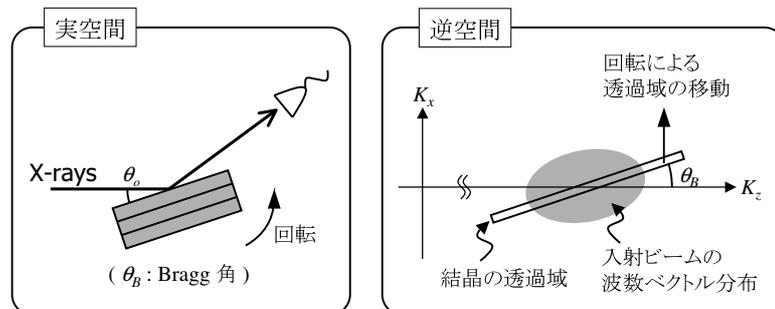


図 1: ロッキングカーブの測定方法(左)と逆空間における解釈(右)。

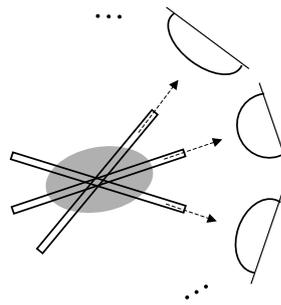


図 2: 回折格子面を変えることによる投影方向の変化。

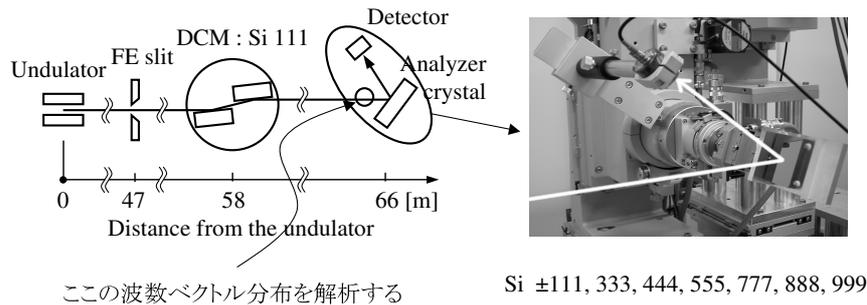


図 3: 実験配置。

下のように解釈される。入射 X 線は有限の波数ベクトル分布をもつ。動学的回折理論 [3] によれば、結晶はこの分布の中からブラッグ角 θ_B 傾いた帯状の領域の波数ベクトル成分だけを抜き取るフィルタとして機能する。実空間における結晶の回転によって、フィルタの透過域は上方に移動する。その結果、ロッキングカーブの形状は、入射 X 線の波数ベクトル分布のフィルタ方向に沿った投影と、フィルタの形状 (結晶本来のロッキングカーブ) の畳み込みになる。

結晶の回折格子面を変えれば、ブラッグ角 θ_B に応じてフィルタの方向も変化する。つまり、入射 X 線の波数ベクトル分布の投影方向が変わることになる。複数の回折格子面を使用してロッキングカーブを測定することで、入射 X 線の波数ベクトル分布の複数の投影の情報を取得することができる (図 2)。これにより、波数ベクトル分布を解析する問題は、少数投影からの 2 次元再構成問題 (トモグラフィ) に帰着する。

我々は、再構成問題の解法として、ordered-subsets expectation-maximization (OS-EM) algorithm [4] を採用した。このアルゴリズムは文献 [4] にあるように、特に核医学イメージングにおいて利用されている。本問題に関してこのアルゴリズムが有利なのは、結晶のフィルタ形状のデコンボリューションも同時に行うことができる点にある。

本診断手法を用いて、放射光の波数ベクトル分布を診断した例を示す。実験配置を図 3 に示す。アンジュレータ放射光からの X 線をシリコン 111 二結晶分光器で 0.659 \AA に分光し、その先に波数ベクトル診断用の完全結晶として、[111] 表面をもつシリコン平板を配置する。回折格子面は結晶の回転によって変更し、111 と高次反射 (333, 444, 555, 777, 888, 999, $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$, $\bar{3}\bar{3}\bar{3}$, 444, 555, 777, 888, 999) を使用した。ロッキングカーブの測定は高分解能ゴニオメータで行い、各ロッキングカーブの半値全幅の $1/30$ でステップさせながら反射強度を記録した。適切な分解能で波数ベクトル分布を解析するために、補間によって 0.1° 間隔のデータに変換し、OS-EM にかけた。解析された波数ベクトルの分布を図 4 に示す。横軸はビームの進行方向の波数ベク

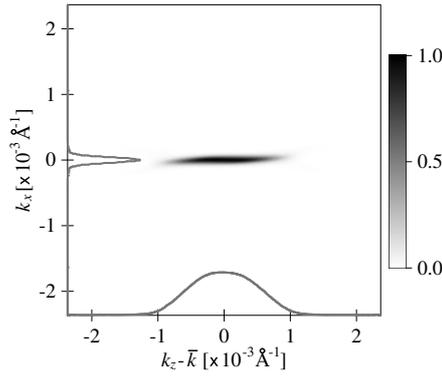


図 4: 解析された波数ベクトル分布。

トルの、平均波数 ($2\pi/0.659 \text{ \AA}^{-1}$) からのずれを表す。縦軸は、図 3 における上下方向の波数ベクトルの大きさを示す。波数ベクトル分布の最大値は 1 に正規化した。横軸と縦軸に描いたカーブは波数ベクトルの各軸への投影であり、通常の意味での単色性と角度発散に対応する。

本節の最初に述べた単色性と角度発散のリンクは図 4 にも見て取れる。今回の例では、波数ベクトル分布は図上で右上方向に向かって約 2° 傾いている。

3 X 線ビームのコヒーレンス関数の診断

コヒーレンスとは、ビームの振幅と位相にどのくらい相関があるのかを示す量である。典型的には干渉計を構築して、測定したいビームを分割し、分割されたビームをずらして重ねて、その強度を測定する。ビームのずれがビームの進行方向に沿っているときのコヒーレンスを縦方向 (時間的) コヒーレンスと呼び、ずれが進行方向に垂直なときのコヒーレンスを横方向 (空間的) コヒーレンスと呼ぶ。

従来の X 線コヒーレンスの解析の多くで、コヒーレンスは縦方向と横方向のコヒーレンスの積として与えられることを前提にしてきた。しかし、前節で解析したような単色性と角度発散がリンクするビームに対しては、縦方向と横方向へのコヒーレンスの因子分解は不適切である [5]。したがって、コヒーレンスは縦横成分を混合した形で診断されなければならない。縦横混合のコヒーレンスを干渉計で測定するためには、X 線ビームに対して任意の縦横混合のずれを与えなければならないが、今の所そのような干渉計は構築されていない。そこで、非干渉的計測法によるコヒーレンスの診断方法を開発するに至った。

波数ベクトル分布とコヒーレンス関数 (波動場の相関関数)[5] の広がりには相反的な関係が見い出されそうである。なぜなら、単一の波数ベクトルで表現される単色平面波は、完全にコヒーレントなビームのひとつである。また、波数ベクトル分布が幅をもつようになると、ビームはコヒーレンスを失っていく。そこで、波数ベクトル分布をフーリエ変換したものとコヒーレンス関数を比較してみることにする。

任意の波動場 ψ は波束形式で表現することができる:

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \int a(\mathbf{k}) \exp\{i[\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega(\mathbf{k})t]\} d^3k. \quad (1)$$

ここで、 a は振幅関数であり、逆変換として

$$a(\mathbf{k}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int \psi(\mathbf{r}, t) \exp\{-i[\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega(\mathbf{k})t]\} d^3r. \quad (2)$$

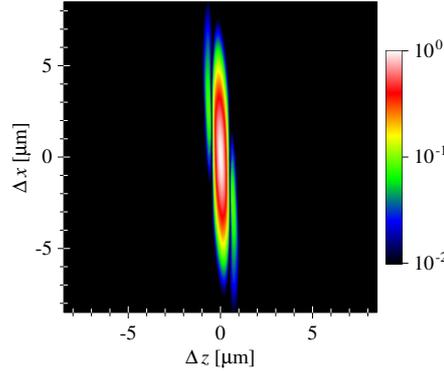


図 5: 解析されたコヒーレンス関数。

と与えられる。全空間における波数ベクトル分布は $(2\pi)^3 |a(\mathbf{k})|^2$ と与えられるが、我々はある特定の領域を通過するビームだけを対象にしているのであり、 $(2\pi)^3 |a(\mathbf{k})|^2$ とビームのコヒーレンスには直接的な関係はない。時刻 t のある有限な領域 D における部分的な波動場の波数ベクトル分布は振幅関数の近似

$$a_D(\mathbf{k}, t) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int_D \psi(\mathbf{r}, t) \exp\{-i[\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega(\mathbf{k})t]\} d^3r. \quad (3)$$

を使って、 $(2\pi)^3 |a_D(\mathbf{k}, t)|^2$ と与えられる。この波数ベクトル分布をフーリエ変換して

$$\int (2\pi)^3 |a_D(\mathbf{k}, t)|^2 \exp(-i\mathbf{k} \cdot \Delta\mathbf{r}) d^3k = \int_D \int_D \psi(\mathbf{r}, t) \psi^*(\mathbf{r}', t) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}' + \Delta\mathbf{r}) d^3r d^3r' \quad (4)$$

を得る。右辺は、波動場の中から領域 D の部分だけを取り出してコピーした後、 $\Delta\mathbf{r}$ だけずらして重ねたときの相関を表している。したがって、 D を診断の対象とするビームの存在する場所を取れば、右辺は時刻 t における瞬間的なビームのコヒーレンスを与える。式 (4) は任意の時間について成り立つので、有限な時間をかけて波数ベクトル分布を測定した場合には、時間平均されたコヒーレンス関数が解析されることになる。

図 5 は図 4 のフーリエ変換の絶対値であり、前節で波数ベクトル分布を解析したビームのコヒーレンス関数の絶対値を表す。横軸は縦方向のずれ、縦軸は図 3 における上下方向のずれである。解析されたコヒーレンス関数は、縦方向と横方向のコヒーレンスの積には分解できない分布をしている。左上と右下にサブピークが現れているのは、二結晶分光器の分光特性による。分光結晶から出てくるビームのサブピーク方向の波数ベクトル分布は、結晶のフィルタ特性を反映してシルクハット形状をしており、そのフーリエ変換はサイドローブをもつことになる。

参考文献

- [1] A. E. Siegman, “New developments in laser resonators,” in *Optical Resonators: Proc. SPIE*, **1224**, 2–14 (1990).
- [2] W. P. Schleich, *Quantum Optics in Phase Space*, (Wiley-VCH, 2001).
- [3] B. W. Batterman and H. Cole, “Dynamical diffraction of x rays by perfect crystals,” *Rev. Mod. Phys.* **36**, 681–717 (1964).
- [4] M. N. Wernick and J. N. Aarsvold eds., *Emission Tomography, The Fundamentals of PET and SPECT*, (Elsevier Acad. Press, 2004), Chap. 21.
- [5] J. W. Goodman, *Statistical Optics*, (Wiley, 1985), Chap.5.

硬 X 線 Young 干渉計を用いた放射光の空間コヒーレンス評価

辻 卓也、吉田 圭佑、小山 貴久、高野 秀和、津坂 佳幸、籠島 靖

兵庫県立大学大学院物質理学研究科

1.はじめに

本研究室では、大型放射光施設 SPring-8 兵庫県 ID(BL24XU)ハッチ C1 において、光源の高輝度アンジュレータを利用した高いコヒーレンスを必要とする様々な開発研究を硬 X 線領域において展開している。例として、光学素子にゾーンプレート(ZP)を用いたマイクロビーム光学系¹⁾や、顕微干渉計²⁾がある。マイクロビーム光学系では、回折限界まで集光するには ZP 全面をコヒーレントに照明する必要があり、顕微干渉計は波面分割型を採用しているために、高い空間コヒーレンスを必要とする。このような実験を行う際には、利用する X 線のコヒーレンスを定量的に把握しておく必要がある。時間的コヒーレンスは分光器のエネルギー分解能によって決まるが、空間コヒーレンスの評価は硬 X 線領域では困難である。そこで本研究において硬 X 線 Young 干渉計を開発し、ハッチ C1 における鉛直方向の空間コヒーレンスの評価を行った。

2.全反射ダブルスリットを用いた硬 X 線 Young 干渉計

Young 干渉計を構築するためには、通常ダブルピンホールなどを使用するが、これを波長の短い X 線領域に適用する場合、回折による拡がり小さいためにピンホール径が $1\ \mu\text{m}$ 以下程度のものが必要となる。しかし、X 線の透過を防ぐためには数十 μm の厚さが必要となり、加工上製作が困難である。そこで本研究では、ガラス基板上に金を細線状に交差させて蒸着し、X 線を金の全反射条件下で入射させることにより金のみの反射を取り出すことができる³⁾、通常の透過型ダブルスリットと等価な全反射型のダブルスリットを開発した。斜入射角を小さくすることにより、見かけの線幅が小さくなり、従ってスリット幅を十分に小さくすることができる。また、全反射ダブルスリットに対する X 線の照射位置を変えることにより、見かけのスリット間隔を自由に変化させることも可能となる(図 1)。作製した全反射スリットは、基板には面精度 $\lambda/20$ のガラス基板を用い、線幅を $200\ \mu\text{m}$ 、膜厚を $20\ \text{nm}$ とし、細線間の角度を 60 度とした。また、斜入射角を金とガラスの反射率の比が最大となる角度である $7.5\ \text{mrad}$ とすることにより、見かけのスリット幅は $1.5\ \mu\text{m}$ となり、スリット間隔は $\sim 240\ \mu\text{m}$ まで変化させることができる。この全反射ダブルスリットの利点として、スリット幅が小さくスリット間隔が可変であることのほかに作製が容易であることがあげられる。作製方法は基板にマスクを用いて金を真空蒸着することで完成する。図 2 に全反射ダブルスリットを利用した硬 X 線 Young 干渉計の光学系の模式図を示す。

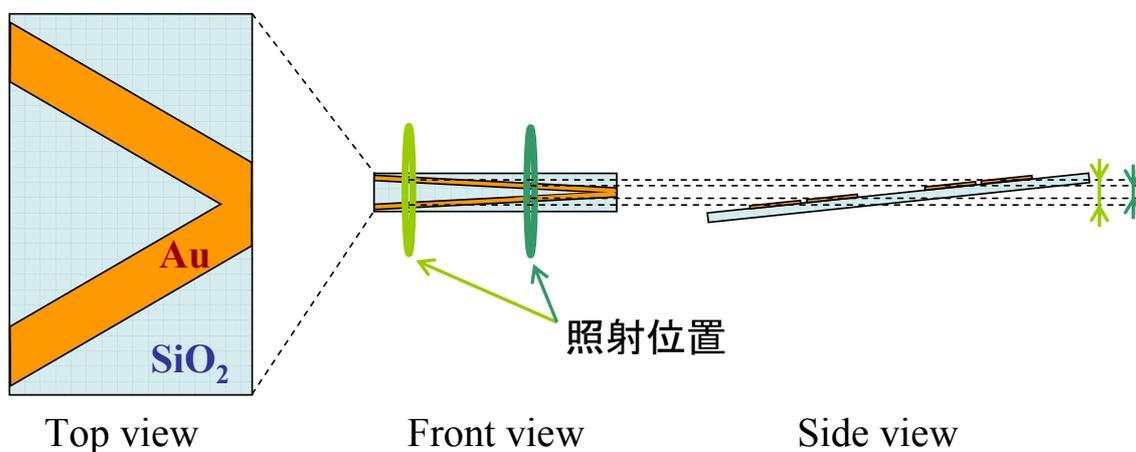


図1 全反射ダブルスリット模式図

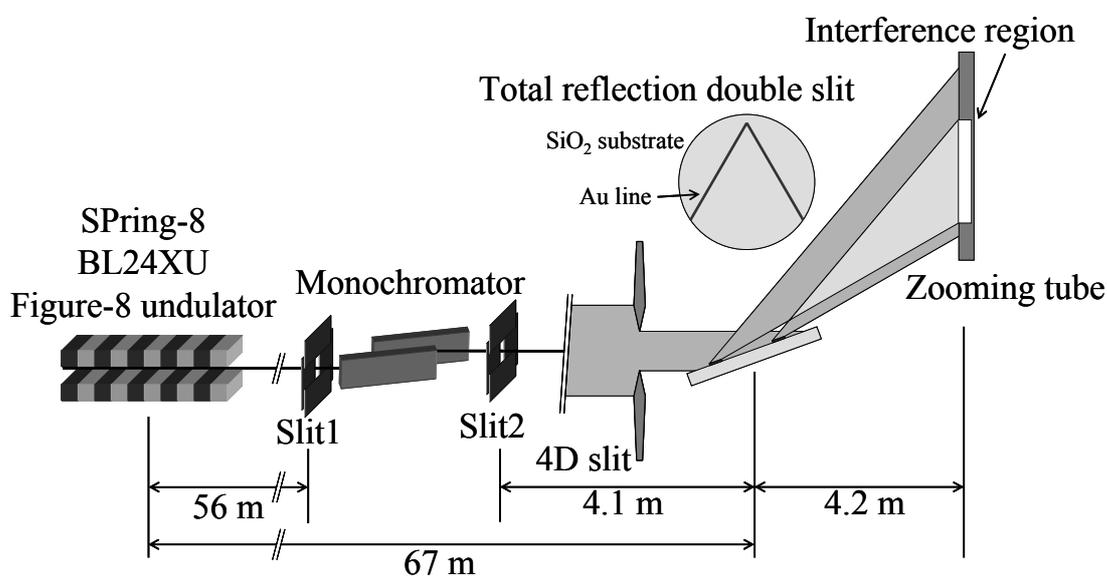


図2 光学系模式図

3.結果

まず、分光器下流にある Slit2 を絞って仮想光源とし、10 keV の X 線の空間コヒーレンスを評価した。その結果を図 3 に示す。図の破線は光源の強度分布が矩形関数であるときのダブルスリットの位置での空間コヒーレンスの理論値であり、仮想光源の大きさが約 6 μm であることがわかった。このことから、全反射ダブルスリットを利用した Young 干渉計が正しく機能していることがわかった。次に、仮想光源としていたスリットを開き、ハッチ C1 における 10 keV の X 線の空間コヒーレンスを評価した。その結果を図 4 に示す。この結果を 2 つのガウス関数の線形結合で表される関数でフィッティングした。これより見積もられる光源サイズは FWHM(Full Width at Half Maximum)で 46.6 μm となった。

しかし 10 keV における光源サイズの理論値は 16 μm である。この両者の違いは、光源と全反射ダブルスリットの間にあるシリコン 2 結晶分光器などによって波面が乱れ干渉性が低下し見かけの光源サイズが大きくなってしまったためと考えられる。

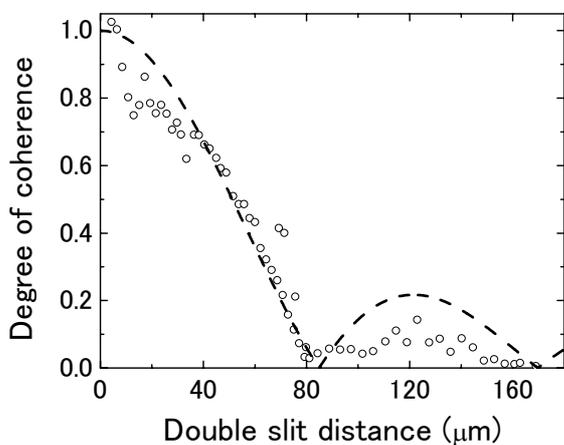


図 3 仮想光源の空間コヒーレンス

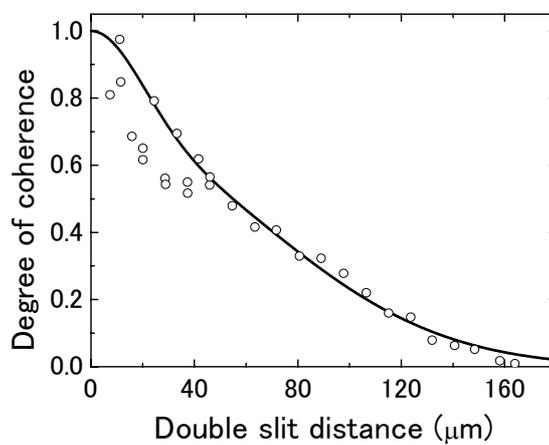


図 4 ハッチ C1 における空間コヒーレンス

参考文献

- 1) Y.Kagoshima, K. Simose, T. Koyama, I. Wada, A. Saikubo, K. Hayashi, Y. Tsusaka, J. Matsui, Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) L1449.
- 2) T. Koyama, T. Tsuji, K. Yoshida, H. Takano, Y. Tsusaka, Y. Kagoshima, Jpn. J. Appl. Phys. **45** (2006) L1159.
- 3) S. Aoki, N. Watanabe, T. Ohigashi, H. Yokosuka, Y. Suzuki, A. Takeuchi, H. Takano, Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 417.

コヒーレント EUV スキャタリング顕微鏡による CD 評価

兵庫県立大学 岸本淳生 木下博雄

Samsung Electronics 李東根

HOYA 株式会社 浜本和宏

EUVL 用マスクの観察として極端紫外線顕微鏡(EUVM)の開発を進め、40nm の位相欠陥の検査に成功した。しかし、EUVM をはじめ、顕微光学系によるパターン観察では高分解能化に限界があり、今後の 22nm hp、さらなる 15nm hp でのパターン観察が困難となる。そのため、顕微光学系によらない新たな検査方法の開発が必要となる。そこで、低コスト、高スループット、高精度で CD 測定を可能とする、コヒーレント EUV 光によるスキャトロメトリー顕微鏡の開発を行ってきた。

図 1 にコヒーレント EUV スキャトロメトリー顕微鏡(CSM)の概略図を示す。システムはコヒーレント EUV 光、サンプルホルダー、CCD カメラからなる。繰り返しパタンの LSI マスクにコヒーレント EUV 光を入射角度 6° で照射し、パターンに応じた回折パターンを CCD カメラで検出する。この回折パターンを基に反復回復法を用いてマスクパターンを再生する。また、回折パターンをあらかじめ CD-SEM で測定して、寸法との比較により CD 値を求める。一般的に反復回復法を用いる際、オーバーサンプリング比 σ は 5 以上が望ましいと考えられるが、我々は σ を約 9.2 でパターン再生を行った。様々なマスクパターンでパターン再生を行い、その結果を図 2 に示した。

CSM と CD-SEM における 6 インチマスク CD 均一性を比較した結果を図 3 に示す。CSM での CD 測定結果は 140nm 前後で、SEM での CD 測定結果は 100nm 前後と、CD 測定結果に誤差が生じたものの、図 3 で示すとおり 6 インチマスクでの CD 均一性においては同じような分布が確認できた。CD ばらつきも共に 3σ 値で 4.5 前後となり、CSM の高い測定信頼性が得られた。CSM と SEM で CD 測定結果に誤差が生じた原因は、CSM と SEM の測定方法の違いが原因だと考えられる。CSM は多層膜反射面のパターン寸法を検出して CD を測定する。それに対し、SEM は吸収体のパターン上部での 2 次電子信号を検出して CD を測定する。そのため、パタンの側壁が傾斜形状になっている場合、CSM の CD 測定値に比べ SEM の CD 測定値が小さくなったと考えられる。

これらの研究より、L&S などの周期的な構造を持つパターン評価では、簡単なアルゴリズムにより像再生が可能なこと、その検出値が現在主流の測定器とも良く一致した測定データが得られたことを確認した。

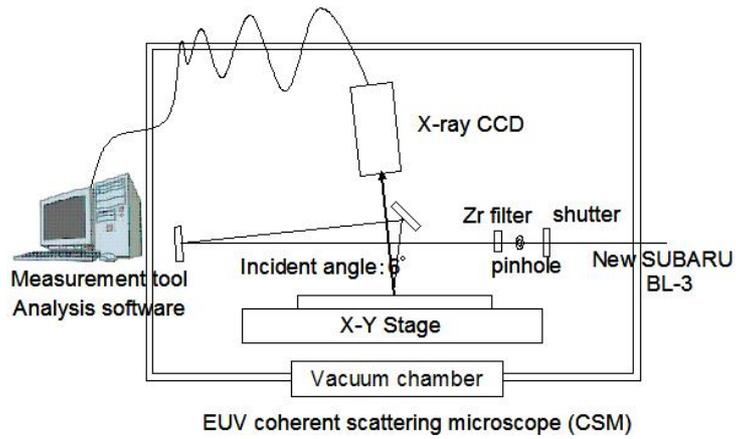


図 1. コヒーレント EUV スキャトロメトリ顕微鏡の概略図

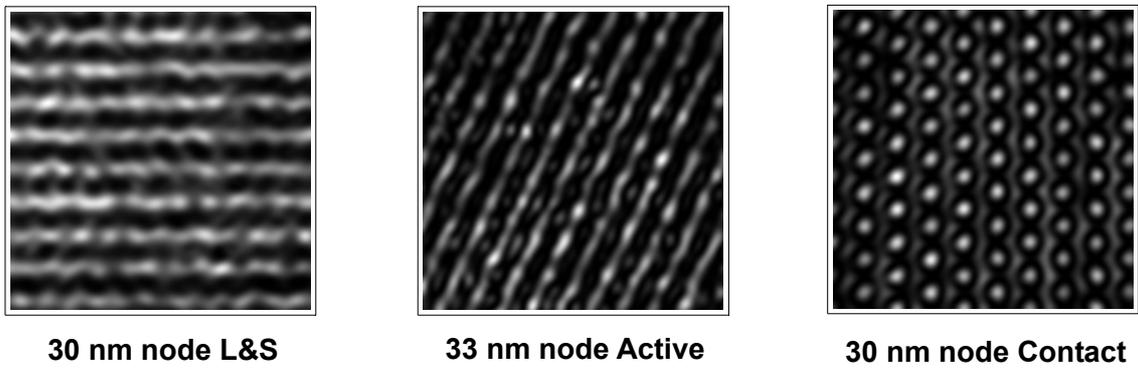


図 2. 反復回復法により再生されたマスクパターン

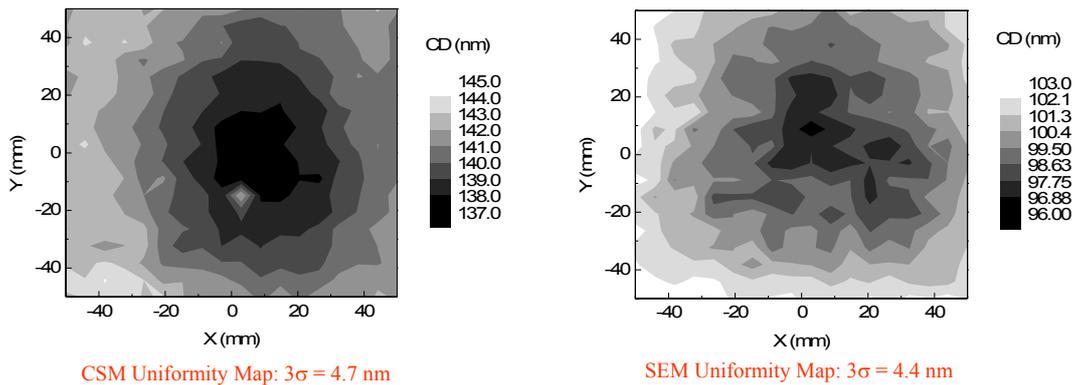


図 3. 6 インチマスク CD 均一性測定の結果比較

コヒーレントX線回折顕微法の材料科学応用に関する取組み

大阪大学 高橋幸生、古川隼人、久保英人、山内和人

理化学研究所 西野吉則、石川哲也

京都大学 松原英一郎

1. はじめに

近年、コヒーレントX線回折顕微法(CXDM)が物質の新しい構造評価法として注目されている。CXDMでは、コヒーレントX線をマイクロメートルオーダーのサイズの試料に照射し、その前方回折強度プロファイルを波数空間上で細かくサンプリングして測定する。そして、そのプロファイルに位相回復アルゴリズムを適用することによって、試料の実像を再構成できる。導出される試料像は試料の電子密度分布を反映しており、電子密度分布の違いによる像のコントラストから物質の構造を可視化できる。試料像の空間分解能は、高波数側まで回折強度プロファイルを測定すると向上し、SPring-8の入射X線強度によって10nm程度の空間分解能を実現できている。材料科学分野では、電子顕微鏡やアトムプローブ顕微法といった成熟した顕微法が存在するが、マイクロメートル厚さの試料を非破壊で観察することは難しい。CXDMでは、硬X線によってマイクロメートル厚の試料の測定が可能であり、非破壊で試料の三次元電子密度分布を可視化でき、ユニークな構造情報を提供してくれる。また、次世代光源X線自由電子レーザー(XFEL)を用いることで、物質中のダイナミックな変化を動画として捉えることが可能になると期待されている。我々は、これまで、第三代放射光施設SPring-8の理化学研究所専用のビームラインにおいて図1に示すようなコヒーレントX線回折測定装置の開発を進め、CXDMの生物、材料科学応用研究を展開している。ここでは、最近のCXDMの材料科学応用の種々の取組みについて紹介したい。

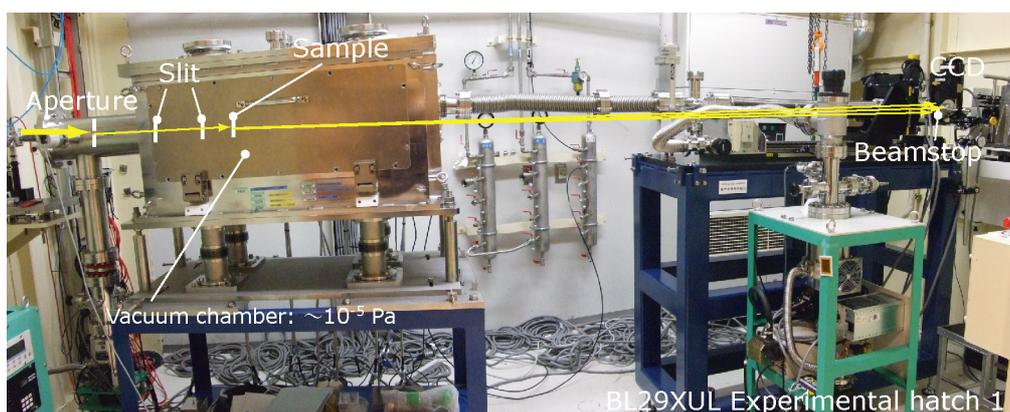
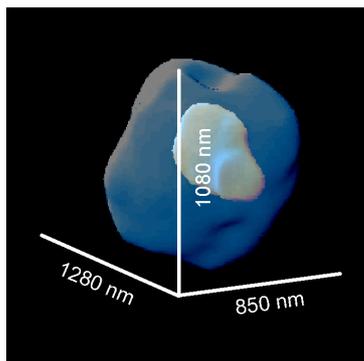


図1. コヒーレントX線回折顕微法装置の外観。

2. アルミニウム合金中の析出物解析の応用^[1]

異種元素を微量添加したアルミニウムに熱処理を施すことによって析出するナノメートルオーダーの物質が転位の運動を阻害して、アルミニウムの強度を飛躍的に向上させることが良く知られている。このような析出強化アルミニウム合金では、析出物のサイズ、形状、分布によって、その強度特性が大きく変化するため、析出物のナノ組織について理解を深めることが新たなアルミニ

ウム合金を設計する上で重要である。我々は、Cu、Mg などが添加された 2000 系の試作アルミニウム合金に CXDM を適用し、その手法としての有効性を評価した。合金試料は粉碎し、 Si_3N_4 膜で支持した。コヒーレントX線回折パターンは、 Si_3N_4 膜を -70° から 70° の範囲を 5° ステップで走査することによって、29 枚の 2 次元回折強度プロファイルを測定した。29 枚の回折強度プロファイルを並べた三次元配列データに Fienup の HIO アルゴリズムを適用して像再生を行なった。図 2 が導出された三次元再構成で、水色で色づけされているのが合金粒子の表面である。この Al 合金試料は、電子顕微鏡観察から Al_2CuMg 相が析出物として存在していることが分かっており、母相の



Al の電子密度、析出物の Al_2CuMg の電子密度に基づいて、図 2 には析出物に由来する高電子密度領域が合金粒子内部に橙色で色付けされており、そのサイズ、形状について評価することができた。

図 2. CXDM によって可視化されたアルミニウム合金粒子の像。水色が粒子の表面で、粒子内部の析出物に由来する高電子密度領域が橙色で色付けされている。

3. Cu 細線のコヒーレントX線回折測定^[2]

金属配線に電流が流れることによって、金属原子が電子から運動量を受け、原子が拡散する。これは、エレクトロマイグレーションと呼ばれ、長時間電流を印加することによって、細線内にボイドが生成し、LSI 実装配線の断線の一つの原因となっている。我々は、CXDM による物質中の構造変化の動画測定のデモンストレーションとして、この現象に着目して、エレクトロマイグレーションの動画化実現に向けた研究を行なっている。 Si_3N_4 膜上に $1\mu\text{m}$ 厚の Cu を蒸着して、収束イオンビームにより Cu 細線の試験片に加工し、さらに電流を長時間流すことによって、ボイド生成した試料を作製した。細線試料のコヒーレントX線回折測定を行なった結果、図 3 に示すようなパターンが観測された。電流を印加していない試料は、細線の形に由来する周期的なパターンが見られる

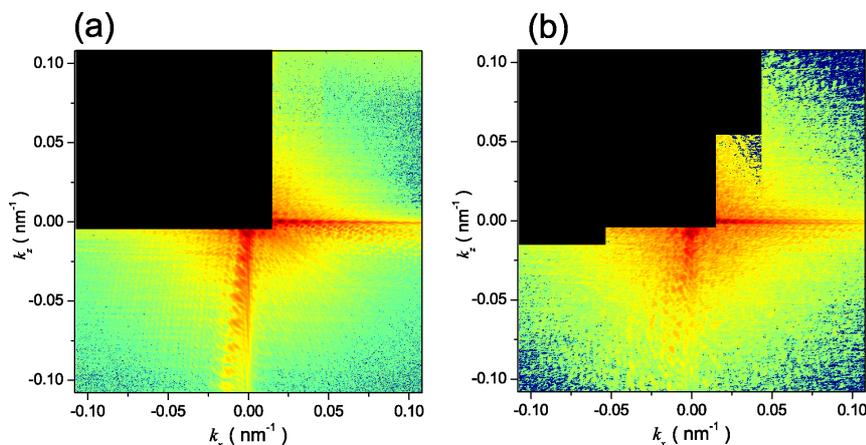


図 3. Cu 細線試料のコヒーレントX線回折パターン。(a)電流印加していない細線試料、(b)長時間電流印加した細線試料。

が、電流印加した試料はボイド生成により細線内の電子密度が不均一になったことにより、周期的なパターンが消滅し、ランダムなパターンが広がっているのが分かる。像再生の解析については現在進めている。

4. 元素識別手法の開発

CXDMの再構成像の強度分布から物質のナノ組織を議論する場合、必然的に電子密度の近い物質を識別することは困難となる。特に、金属元素はその原子番号の差異に関わらず、電子密度が同等の大きさを持つ場合が多い。我々は、電子密度の近い物質同士の識別を可能にするために、マイクロメートル厚の金属試料でも十分X線が透過する硬X線領域において元素の吸収端周りのX異常散乱を使った元素識別 CXDM の開発を行なっている。UCLA のグループでは軟X線領域において ビスマスのM吸収端を使って同様の手法の実験に成功しているが、100nm 程度の薄い試料に限定される。我々は、図 4(a)に示すような 500nm 厚の Ni と Cu で構成されるテスト試料を作製し、Ni の K 吸収端周りのエネルギーで回折パターンの測定を行なった。回折パターンには、Ni の異常散乱に由来する非対称な回折パターンが観測された。また、Ni の原子散乱因子の大きさの差が顕著な組み合わせで再構成像の大きさの差を計算した結果、Ni 元素で構成されるロゴ部分の強調された像を導出することができた。

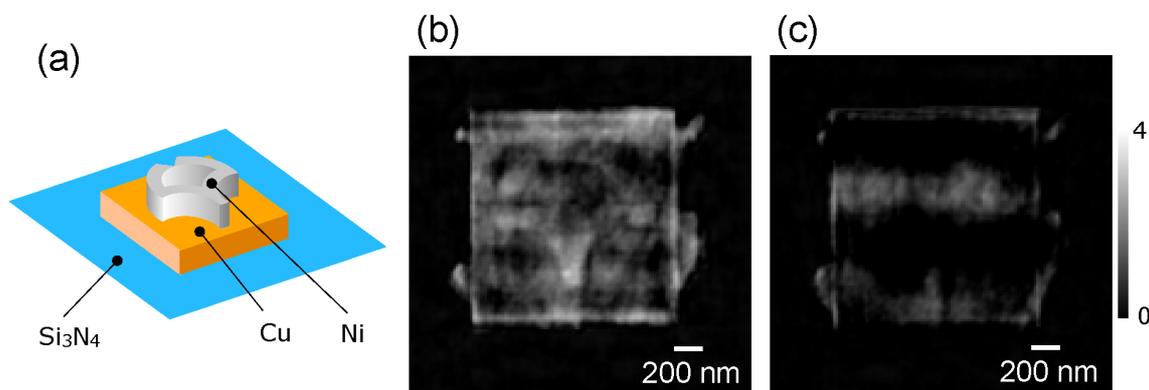


図 4. (a)元素識別 CXDM ために作製したテスト試料の模式図。(b)(c) Ni の K 吸収端周りの入射エネルギーで測定された 2 つの回折パターンから再構成された像の差分像、(b)Ni の原子散乱因子の大きさの差が顕著な組み合わせ、(c)Ni の原子散乱因子の大きさの差がほぼ等しい組み合わせ。

5. 超解像再構成アルゴリズムの開発^[3]

試料像の空間分解能の更なる向上のためには、入射X線輝度の増加が不可欠である。一方で、XFEL などの次世代光源の高輝度X線照射下では、試料の照射損傷が深刻になると言われている。すなわち、試料を破壊せず、かつ高分解能再構成像を得ることは大変難しいと言える。この問題を解決する一つの方法が、さほど入射X線強度を必要としない低波数側の回折データから高波数側の回折データを推定する超解像法である。我々は、最大エントロピー法(MEM)が CXDM のための超解像法の一つの有力な方法であることを見出した。図 5(a)はシミュレーションに用いたモデ

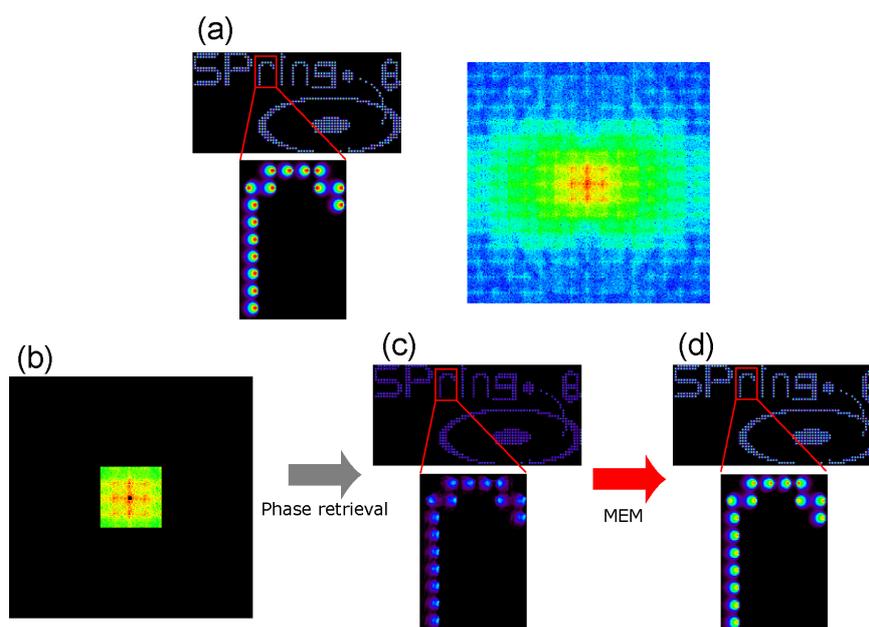


図 5. (a) CXDM の超解像像再生のシミュレーションに用いたモデルおよびそのモデルから計算して得られた回折パターン。(b) (a)の回折パターンの中心部と高波数側をマスクした回折パターン。(c) (b)の回折パターンに HIO アルゴリズムを適用した導出された再構成像。(d) (c)の再構成像に MEM を適用した再構成像。

ルとこのモデルから計算して導出された回折パターンである。この回折パターンを図 5(b)のように中心部と高波数側をマスクして、HIO アルゴリズムを適用すると図 5(c)のような再構成像が導出され、細かな構造が再構成されないのが分かる。そして、この再構成像を初期値として MEM を適用すると図 5(d)に示すような細かい構造がオリジナルのモデルに近づくのが分かる。すなわち、MEM が機能して、マスクした領域の回折データを推定したと言える。

6. まとめと展望

最近の CXDM の材料科学応用の種々の取り組みについて紹介した。硬X線を使った CXDM は金属などの重元素を含むミクロンオーダーサイズの物質の非破壊、3次元ナノ組織解析法として有望であると言える。また、XFEL の利用に向けて、材料科学分野では構造変化を動画化するような研究にインパクトがあり、加熱時、電流印加時の物質の経時変化を CXDM で捉えたい。それと同時に試料準備技術などあまり表に出てこない地道な技術開発が CXDM の材料科学応用のために不可欠であり、これについても積極的に取り組みたい。

参考文献

- [1] Y. Takahashi, Y. Nishino, T. Ishikawa, E. Matsubara, *Applied Physics Letters* **90** (2007) 184105.
- [2] Y. Takahashi, H. Furukawa, H. Kubo, K. Yamauchi, Y. Nishino, T. Ishikawa, E. Matsubara, submitted to *Surface and Interface Analysis*
- [3] Y. Takahashi, Y. Nishino, T. Ishikawa, *Physical Review A* **76** (2007) 33822.

大きい試料の局所複素透過率を求めるコヒーレント X 線回折顕微鏡法

理研播磨研究所 X 線干涉光学研究室 香村芳樹、石川哲也

JASRI 大東琢治

コヒーレント X 線回折法を応用した 2 種類の方法により試料の高分解能局所観察の研究を行っている。SPring-8、BL19LXU と BL29XUL を用いた実験の現状を報告する。一つ目は ptychography 法と呼ばれる方法で、二つ目が逆空間シェアリング干渉法とコヒーレント X 線回折法を併用し回折パターンに位相付けする方法である。

まず、ptychography 法についてデモ実験を行った。ptychography 法は、有限サイズのビームで試料(あるいはビーム自体)を走査し、複数の重なりを持った視野の回折像を撮影するという簡便な方法である[1]。一般に、複素物体(吸収も位相シフトも起こすような物体)をコヒーレント X 線回折法で扱う場合、回転対称で複素共役な分布を持つ解が同時に存在するため、イテレーション計算を行うと、両者の間を行き来して、単調な収束に向かいにくい(特に試料外形が回転対称に近いと難しい)。しかし、ptychography 法では、隣の視野と十分な重なりを持って測定がなされるので、回転対称な解が排除され、単調な収束が達成される。大きな試料に対しても、複数の回折像より高速に収束解に到達させる事が出来る。実験は、9keV X 線を用い、BL29XUL の TC スリットを仮想光源とし、約 40m 下流の実験ハッチ 2 にクロススリットと試料、そして可視光変換型 CCD カメラ(浜松ホトニクス社、pixel size=4.5 ミクロン)を置いて行われた[図 1]。Fresnel zone plate (FZP) をテスト試料としてデモ実験を行った。その際、20 ミクロン角のクロススリット(TDC 社製、研磨済みタンタルブレード 4 枚組)を FZP から 3~4mm 程度の上流に置き、視野制限をした。クロススリット面では、ほぼ平面波が照射されている事が確認された。また、検出器の PSF(Point Spread Function)を別途計測し、以下のデータ解析は PSF の補正を経て行われた。FZP の場所を水平方向、垂直方向、それぞれ、10 ミクロンピッチでずらし、6 × 3(合計の視野として 70 ミクロン × 40 ミクロン)分の回折像を撮影した。この回折像と、それぞれの視野に対応する電子密度分布の推定値に対して順番に反復的にイテレーションをかけ[図 2]、得られた像を図 3 に示す。図 3 の二点での位相シフトと振幅透過率のプロファイルを図 4 に示す。乱れが見られる物の、位相シフトと振幅透過率とが逆符合の変調を起こしている様子が見られる。今回の例では、半幅で、0.18 ミクロン程度の構造まで確認する事が出来た。乱れは、試料とクロススリットの間の伝播の効果も補正していない事による物と大きく考えており、補正を試みる予定である。本手法は有望ではあるが、興味有る局所構造を求めるために、必ず、その周囲の回折データも同時に取らなければならないのが、煩雑である。そこで以下の方法も試みた。

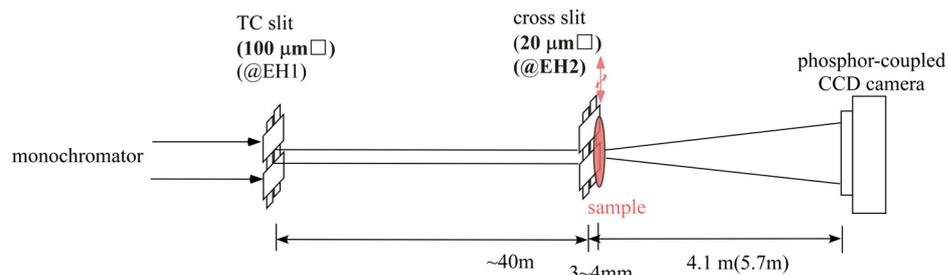


図 1. Ptychography 法の実験概念図

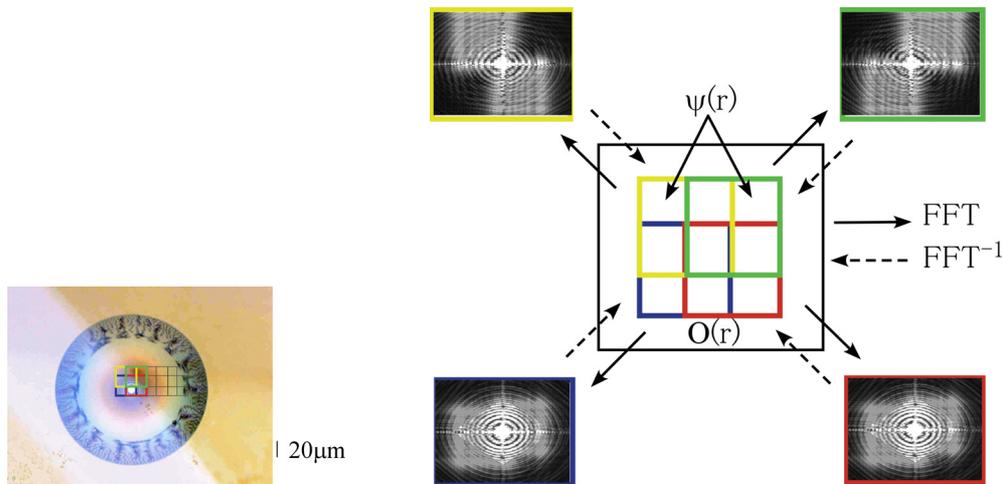


図 2. Ptychography 法実験のテスト試料の写真、実験データの例と反復イテレーションの概念図

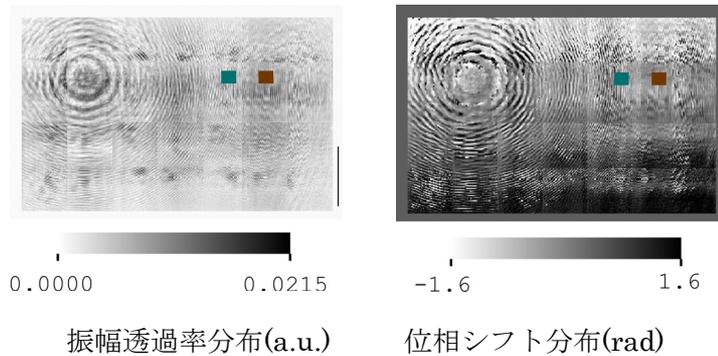


図 3. Ptychography 法実験のイテレーションの結果得られた試料の複素透過率分布。スケールバーは 10 ミクロン。

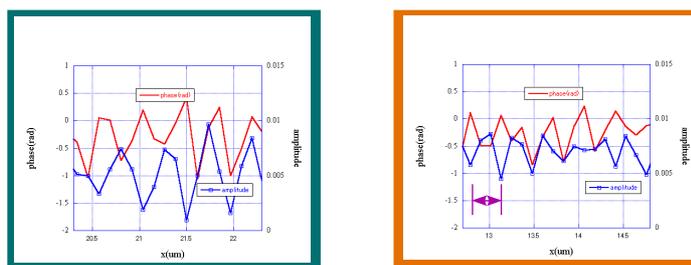


図 4. Ptychography 法実験のイテレーションの結果得られた試料の複素透過率分布。図 3 の二点での振幅透過率分布(青)と位相シフト分布(赤)の一次元プロファイルを示す。

次に、逆空間シェアリング干渉法とコヒーレント X 線回折法を併用し回折パターンに位相付けする実験手法を試みた。実験は、BL19LXU で 9keV X 線を用いて行われた。ハッチ 1 に仮想光源(10 ミクロン角のクロススリット)を置き、約 10m 下流の実験ハッチ 3 で得られる可干渉なビームを用い、実験を行った。ビーム中に X 線プリズムを置き、5 ミクロン角のクロススリットに二光束が照射される様に、調整した。開口の回折パターンが二つ生じるが、その片方を、下流に置いた別のプリズムで同じ角度だけ

偏向させ検出器面で重ねた(図 5)。Young のスリット実験と同様に、スペックル斑点に、二開口を見込んだ角度に対応した間隔の干涉縞(搬送波)が載る。次に開口下流のすぐそばに試料を置き、試料の回折パターン二つが検出器面上で重なる様にした。開口と試料の距離が十分小さければ、二つの回折パターンの位相分布は同一と考えられる。検出器のピクセルから見ると、二つの開口から一定の角度差で回折波が到達しており、二つの波面の位相差を「逆空間シェアリング干涉計測」により求める事が出来る。(ここで、以下の近似をする。①回折波の内、前方散乱に近い成分だけ干涉に利いているので、プリズムによる偏向角は一定と考えて良い。②プリズム 2 の透過により回折波は減衰を受けるが、位相分布は一定の傾きが付く以外に変調を受けない。③下に示す偏向角ではクロススリットのサイズの見かけ上の変化は無視できる。)

9keV X線に対し、プリズムの入射角を 2 度、プリズムによる偏向角を 90 マイクロラジアン(18 秒角)、試料と直交スリットの距離を $\leq 3\text{mm}$ 、試料とプリズム 2 の距離を 8.5cm、画像検出器と直交スリットの距離を 2.7m とした。得られた干涉縞の間隔は 46 ミクロン程度で、可視光変換型 CCD カメラ(上述)で高い visibility で観察出来た。X線プリズム 1(図 5)の並進運動によって縞走査法のデータセットを取り、回折パターンの位相決めを行う。原理は以下の通りである。二球面波干涉では、検出器面に搬送波による一定勾配の位相分布が観察される。この勾配は、二開口を見込む角度に比例する(概念図、図 6 で $\Delta\theta$)。有限サイズの開口や、試料が入った場合では、スペックルが生じ、それぞれの回折波の波面は球面波からずれる。図 5 の「逆空間シェアリング干涉計」では、一定シェア角 $\Delta\theta$ 離れた波面が波数空間で重ねられ、波面の向きの変調を、干涉縞間隔の変調という形で、検出器に記録する。角度変調(図 6 で α)は、球面波からの位相差(図 6 で Φ_s)の微分に比例しており、積分すると位相差が求められる。波面の向きを完全にトレースできれば、波面が再生出来、つまり、位相分布が回復できる事になる。この考え方に基づき、開口や直下流に置いた試料による回折パターンの位相を求めた(投稿論文準備中)。

一方、プリズムを外したコヒーレント X線回折顕微鏡法測定では回折パターンの振幅が計測される。これらを併用すると、検出器面での複素振幅(位相と振幅)が決定でき、開口や試料面での波面に戻す事が可能になる。図 5 の光学系で、試料を外した場合の実験結果を以下にまとめる。単一光照射、二光束照射で得られた像を図 7(a),(b)に示す。縞走査法で得られた回折パターン位相分布を図 7(c)に示す。隣り合うスペックルで縞が約一周期ずれている様子が見て取れる。位相を繋いで搬送波を差し引くと図 7(d)が得られた。中心スペックルと隣接するスペックルでは約 π の位相ジャンプが見られている。四角い開口に対する Fraunhofer パターンの複素振幅は、理論上は sinc 関数となり、隣り合うスペックル間で符合の反転(π の位相ジャンプ)が起こる。実験結果もこれと一致した。また、検出器面での複素振幅(位相と振幅)から、開口面での波面に戻すと、図 7(e),(f)の様になった。ただし、振幅が小さい領域では、位相分布はノイズだらけになるため、振幅がピークの 10%以上の領域のみについて、位相分布を計算させた。また、画像上の一ピクセルは約 0.7 ミクロンに相当する。45 度傾けた開口後面による波面の振幅と位相の分布が求められた。今回の方法は波面やビームのコヒーレンスを測る方法としても有用である。

透過試料を入れた場合にも、回折パターンの位相の解析結果が得られた。解析は現在進行中であるが、その詳細を書くスペースが無いので、ここでは省略する。コヒーレント X線回折顕微鏡法で扱う試料は非結晶で回折パターンが連続的なので、位相分布をつなぐ事が一般に可能と思われる。幅広い応用のためには、ダイナミックレンジが広く低ノイズの検出器の利用が不可欠であろう。

参考文献 [1] J.M.Rodenburg, et al., PRL, 98, 034801 (2007)

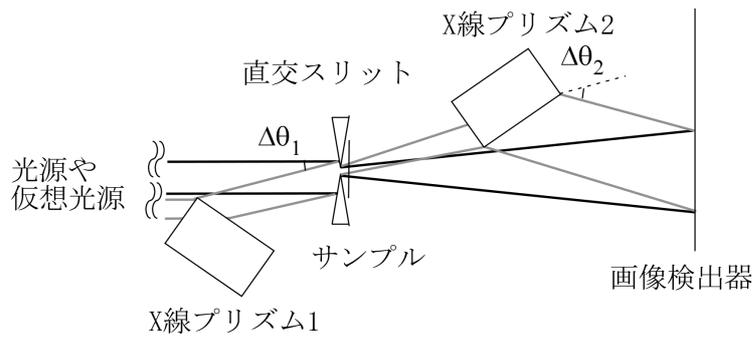


図 5. コヒーレント X 線回折実験(プリズム二個を外した黒いビームだけの場合)と位相シフトスペクトル干渉法を併用した場合(プリズムを入れた灰色のビームを重ねた場合)の概念図

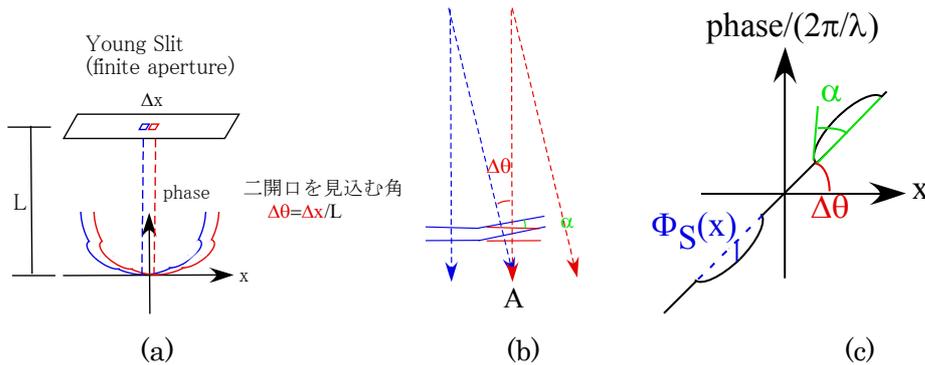


図 6. (a)逆空間シェアリング干渉計で重ねられる二つの波面の概念図、(b)波面の曲がりがある時に逆空間シェアリング干渉計で観察される位相差の模式図、(c)検出器面で観測される位相分布に二球面波干渉による一定勾配の成分と球面波からの位相差 $\Phi_S(x)$ 、曲がり角 $\alpha(=\lambda/2\pi \text{ d}\Phi_S(x)/\text{d}x)$ が可視化される事を示す模式図(λ は x 線の波長)。

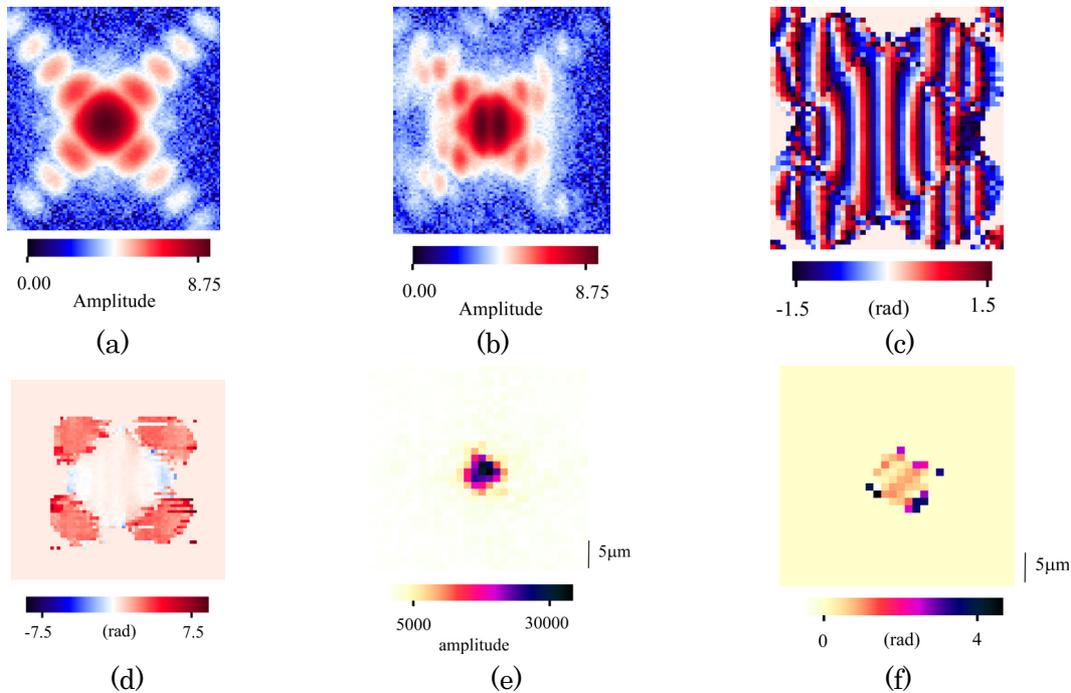


図 7. (a) コヒーレント X 線回折顕微鏡計測での振幅分布(対数表示)、(b) シェアリング干渉計測での振幅分布(対数表示)。(c)縞走査法による位相分布(搬送波込み、単位ラジアン)、(d)回折パターンの位相分布(搬送波差し引き後、単位ラジアン)。(e)開口面での振幅分布。(f) 開口面での位相分布。

均一視野ゼルニケ型位相コントラスト X 線顕微鏡の開発

竹内晃久、鈴木芳生、上杉健太郎 JASRI / SPring-8

1. はじめに

SPring-8 BL20XU、BL47XU では、空間分解能 100 nm 以下を目標とした高分解能マイクロ CT の開発を行っており、その一環として、Fresnel zone plate (FZP) を対物素子として用いた X 線結像光学系の開発を進めている[1-3]。CT においては、視野の広さが測定可能な試料の大きさを決定することから、X 線結像光学系に求められる条件として、広い視野で均一な強度分布、結像特性を確保することが必要である。結像光学系の性能は、対物素子だけでなく照明系にも大きく左右される。我々は、既に所有している対物 FZP との組み合わせで上記の要求を最大限満たせるような照明系として、多角形（八角形）回折格子型の集光照明系（コンデンサ）を開発した。回折格子パターンは一律なピッチで描かれており、これに放射光からの準平行光を入射することで、擬似的なケーラー照明が得られる。この形状のコンデンサを集光照明系に用いることにより、空間分解能 160 nm、視野約 50 μ m に達し、視野全体にわたりほぼ強度ムラのない様なフィールドが得られるようになった[3]。

一方で、X 線結像顕微鏡の利用実験において、高分解能化に伴う観察対象の微細化により、従来吸収で十分なコントラストが得られていたような組成の試料でも満足いくコントラストでの測定が難しくなってきた。位相コントラスト法による測定は本来、ライトマテリアル系の試料に対しての強力な測定ツールとして期待されているが、上記の理由からより重元素系の試料の測定についても、吸収よりも感度が高い位相コントラストを利用した測定方法が求められるようになってきた。位相コントラスト X 線顕微鏡の開発は、様々な種類が提案/開発が進められているが、我々は、前述の多角形コンデンサによるケーラー照明系と組み合わせ、ゼルニケ型位相コントラスト顕微鏡の開発を行っている。ゼルニケ法の原理は、対物素子の後焦点面現れる物体のフーリエスペクトルに対し、その 0 次光のみ $\lambda/4$ ないし $3\lambda/4$ の位相差を与えるような位相板を挿入することによって、像面で位相差を可視化するというものである。ケーラー照明光学系は、対物素子の後焦点面において試料の回折光と非回折光（0 次光）を空間的に分離しやすいことから、ゼルニケ法に適していることが知られている。

ここでは、多角形コンデンサを用いたケーラー照明によるゼルニケ位相コントラスト X 線顕微鏡の光学系、性能評価および観察した試料の例について報告する。

2. ゼルニケ法の像強度

試料の非回折光のみ位相をシフトする位相板の場合、得られる像の強度は、

$$I = a^2 \left\{ 2 + b^2 - 2 \cos \alpha - 2b \cos \beta + 2b \cos(\alpha - \beta) \right\} \quad (1)$$

で与えられる。ただし、試料、位相板の振幅透過率をそれぞれ $ae^{i\alpha}$ 、 $be^{i\beta}$ とする。理想的な位相板を仮定したとき ($b = 1$, $\beta = \pm\pi/2$)、式(1)は、

$$I \sim a^2 \left\{ 3 \pm 2\sqrt{2} \sin(\alpha \mp \pi/4) \right\} \quad (2)$$

と表される。ここで、 \sin 関数内の引数が $\alpha - \pi/4$ の場合を bright phase contrast (BPC)、 $\alpha + \pi/4$ の場合を dark phase contrast (DPC) と呼ぶ。この式から分かるように、この手法は試料によって生じる位相差と得られる像のコントラストの間に線形性が無いことから、定量性に欠け、トモグラフィによる 3 次元観察への

応用が難しいとされる。しかしながら、微細な三次元形状の把握が主目的な測定の場合においては、コントラストの定量性を無視して、この光学系を用いてCTの測定を行うこともある。また、(2)式からわかるように、DPCよりもBPCの方がより厚みのある物体まで強度と位相変化の関係が単調増加の関係で観察することが可能である。たとえばポリスチレンのような軽元素試料の場合、10keV前後のエネルギー領域で厚さ10 μm 程度まではBPC像強度は位相差と単調増加の関係にあり像の解釈が容易である。さらに位相変化が小さい弱位相物体に対しては、(2)式において $a \sim 1$, $\sin\alpha \sim \alpha$ とすると、

$$I \sim 1 \pm 2\alpha \quad (3)$$

と、像強度が近似的に線形性を示す。

3. 光学系

実験光学系の概略図を図1に示す。照明系に用いるコンデンサ、対物素子であるFZP、位相板は全てNTTアドバンステクノロジー社製、イメージ検出器に用いた可視光変換ユニット付きCCDカメラは浜松ホトニクス社製である。実験は主に、SPring-8のBL20XU若しくはBL47XUで行われる。ここでは、BL20XU第二ハッチでの実験のパラメータを示す。X線のエネルギーは8 keVである。アンジュレータからの高いコヒーレンスをもったビームをそのまま結像光学系の光源として用いると、像にスペックルノイズが生じ画質を低下させるため、コンデンサの前にビーム拡散板(円形に切り取ったコピー用紙1枚をモーターにて回転)を設置している。最外輪帯幅100 nm、直径155 $\mu\text{m}\phi$ (若しくは直径310 $\mu\text{m}\phi$)のTa製FZPを対物素子として用いている。それに対して、コンデンサの回折格子パターン線幅は200 nmであり、つまりコンデンサのNAはFZPのその半分である。本来、結像理論に従えば、対物とコンデンサのNAの設計を等しくすれば空間分解能は最も高くなるが、ケーラー照明の場合、このような設計にすると視野が非常に狭くなってしまい、本光学系の設計思想に反する。コンデンサのNAを対物FZPの半分に設計することで、空間分解能は若干犠牲になるが、FZPの直径の約半分の視野が得られるようになっている。対物FZPの物体面位置に試料を置き、その像面にイメージ検出器を設置した。直径155 $\mu\text{m}\phi$ の対物FZPを用いる場合、試料-FZP間距離約101.5 mm、FZP-検出器間距離は約6600 mm、倍率は約65倍である。検出器のピクセルサイズは4.34 μm 、物体面上に換算したピクセルサイズは約66.8 nmである。試料位置に何も置かない場合、FZPの後焦点位置には、FZPの直径の半分の大きさの輪帯状のスポットが形成される。位相板はこの輪帯の形状に合わせてパターンを設計している。パターンは厚さ0.96 μm 、輪帯幅4 μm のTaで描かれたものと、逆にその反転パターンで描かれたものがあり、8 keVで使用した際に試料の非回折光の位相をそれぞれ丁度 $\lambda/4$ 進ませる、または遅らせる効果がある。前者の位相板を用いた場合得られる像がBPC、後者がDPCに相当する。

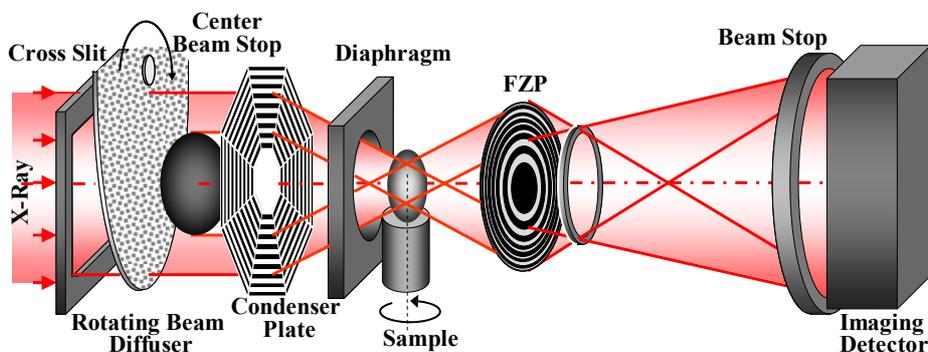


図1 多角形コンデンサを用いたケーラー照明ゼルニケ型位相コントラストX線顕微鏡光学系。

4. 性能評価

4. 1. 照明強度の均一性

図 2 (a), (b)にそれぞれ、この光学系による試料が無い場合の像 (I_0 像) とその中心付近水平方向の強度プロフィールを示す。フィールド中心と周辺では強度差が無く殆ど一様な強度分布になっていることが分かる。

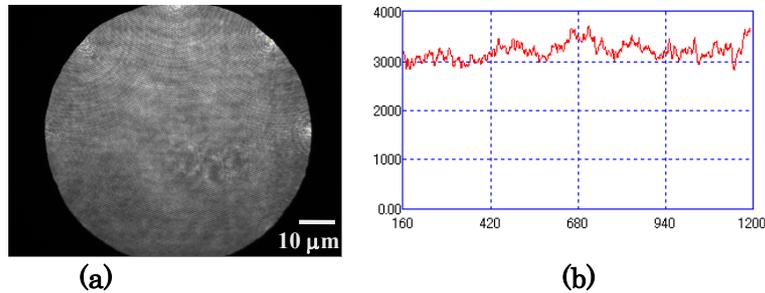


図 2 多角形コンデンサを用いたケーラー照明系の像フィールド(a)、とその視野中心を含む水平方向の強度プロフィール(b)

4. 2. 空間分解能

図 3 (a)に、この光学系で得られたテストパターンの透過像を示す。様々なピッチをもつパターンの像から、最小 200 nm ピッチのパターンまで解像できていることが分かる。図 3(b)は、この光学系の透過モードでの modulation transfer function (MTF)を示す。黒い実線は Hopkins の結像理論より導いた計算値である。コンデンサが八角形の形状をしているため、MTF 曲線がディスクリートの階段状の落ち方をしている。MTF がゼロになるところが 7.5 line pairs / μm で、この系の波動光学的な空間分解能は 133nm と見積もられる。コンデンサの NA が対物 FZP の NA の半分であるため、完全インコヒーレント照明時の空間分解能には及ばない。灰色の実線は、この計算値に検出器固有の MTF と光学系の倍率を考慮に入れたものである。黒丸のプロットは、図 3(a)のテストパターンの各ピッチパターンの像コントラストを各空間周波数毎にプロットしたものであり、このプロットが、灰線で示した計算値とよく一致していることが分かる。

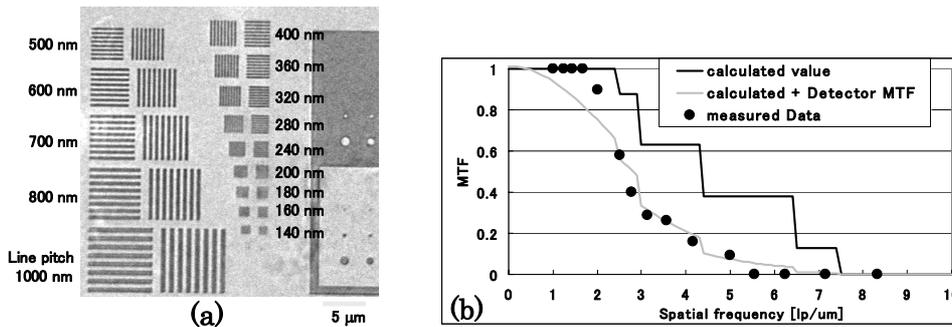


図 3 (a)Ta テストパターンの透過像。(b)光学系の MTF(黒線)、倍率と検出器 MTF を考慮した MTF(灰線)、a)のテストパターンの像コントラストからプロットした MTF 実測値。

5. ゼルニケ位相コントラスト X 線顕微鏡の測定例

5. 1. ポリスチレン微粒子

試料にポリスチレン微粒子 (直径 8 μm) を選び、透過像、ゼルニケによる BPC、DPC の各モードで撮影を試みた。得られた像を図 4 (a), (b), (c)にそれぞれ示す。表示のコントラストは 3 枚とも同じにしてある。透過像では、全く見えない。8keV でこの試料の透過率は 99.66%である。一方、ゼルニケ法による像では、BPC,DPC とともに粒子構造が明瞭に観察できる。図 4 (b) の BPC 像中の線分を引いた部分の像コントラストを図 4 (d)に示す。2 章で述べたように、この大きさのポリスチレンなら、試料の厚みと像の強度分布は線形性

を保つはずである。しかしながら、実際には物体の境界付近に、コントラストの変調が見られる。また、球状の物体であるにもかかわらず、強度分布では物体の中心付近はプラトーであり、物体が平面であるように見える。これは、位相板の幅が $4\mu\text{m}$ と、フーリエスペクトルの 0 次光に比べて比較的大きいため生じる現象と考えられる。

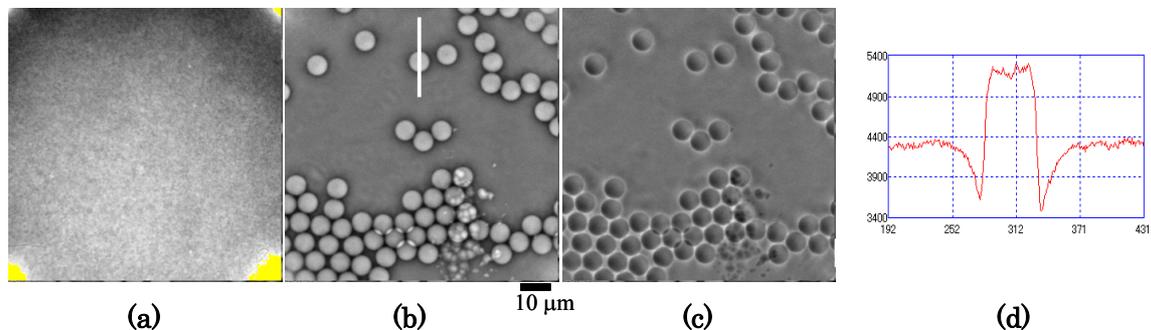


図 4 ポリスチレン球 (直径 $8\mu\text{m}\phi$) の X 線像。(a)透過像、(b)ゼルニケ BPC 像、(c)ゼルニケ DPC 像。(d)BPC 像(b)中白線で描かれた領域の強度プロファイル。

5. 2. ヒト子宮頸ガン由来 Hela 細胞

図 5 にヒト子宮頸ガン由来 Hela 細胞を撮像した例を示す。試料は固定後乾燥させた状態のものである。図 5 (a)は透過像、図 5 (b), (c)はそれぞれゼルニケ BPC 像、DPC 像である。透過像では全く存在が確認されない構造がゼルニケ法によって鮮明に可視化されており、細胞核内部の核小体の構造まで確認できる。

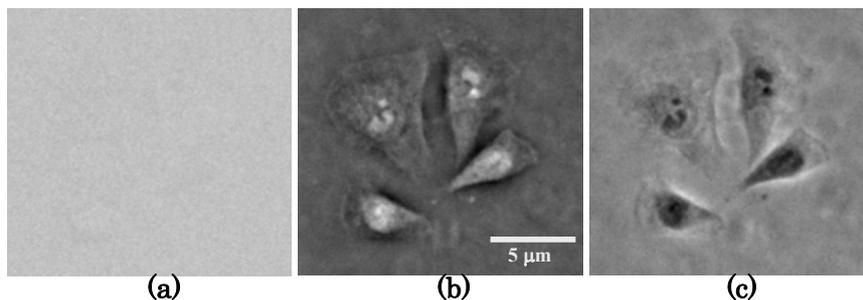


図 5 ヒト子宮頸ガン由来 Hela 細胞の X 線像。(a)透過像、(b)ゼルニケ BPC 像、(c)ゼルニケ DPC 像。

6. まとめ

多角形コンデンサによるケーラー照明系を用いた X 線顕微鏡を開発し、空間分解能 200nm 以下、 $50\mu\text{m}$ にわたり均一な強度分布を持つ視野が得られた。この光学系をゼルニケ型 X 線位相コントラスト X 線顕微鏡に応用し、透過では見えない試料の可視化に成功した。

謝辞

ヒト子宮頸ガン由来 Hela 細胞は東海大学工学部伊藤敦教授からご提供いただき、同試料に関する情報、適切なアドバイスをいただきました。この場をお借りして感謝申し上げます。

References

- [1] A. Takeuchi, K. Uesugi, H. Takano, and Y. Suzuki, Proc. SPIE 4499, 29 (2001).
- [2] A. Takeuchi, et. al., Rev. Sci. Instrum., 73, 4246-4249 (2002).
- [3] K. Uesugi, A. Takeuchi and Y. Suzuki, Proc. SPIE, vol 6318, (2006)

マルチ keV X線位相差顕微鏡への展開

筑波大学大学院 数理物質科学研究科

星野真人, 渡辺紀生, 青木貞雄

1. はじめに

X線領域における位相情報を用いた顕微法は、単なる吸収を用いた測定法よりも感度が非常に高く、近年ではコヒーレントなX線を用いた干渉顕微鏡により、定量的な位相情報の測定なども行われるようになってきている[1-3]。そのなかでも、Zernike型のX線位相差顕微鏡は、通常の結像光学系に位相板からなる空間フィルターを挿入するだけで、位相差コントラスト像が容易に得られることから、吸収コントラストとの併用が可能である。Zernike型のX線位相差顕微鏡は、軟X線領域で初めて実現され、その後様々なエネルギー領域で開発が行われてきた[4]。特に、観察対象がたんぱく質などの軽元素で構成される場合、複素屈折率 $n=1-\delta-i\beta$ の位相項 δ と吸収項 β との差が大きくなる数 keV 以上の X 線エネルギー領域では、少ない放射線線量で高いコントラストで試料観察ができるということから、生体試料、特に位相物体となりうる微小試料などへの応用が期待されている[5]。

我々のグループでは、Photon Factory の BL3C(旧 3C2)において、ゾーンプレートを用いた Zernike 型の X 線位相差顕微鏡の開発を行ってきた。これまでに、ファイバーなどの標準試料に加え、生体試料などへの適用を行い、より高いコントラストで試料観察が可能であることを示した[5,6]。最近では、位相試料の 3 次元イメージングへの応用も行っており、本稿ではゾーンプレートを用いた X 線位相差顕微鏡の現状について報告する[7]。

2. ゾーンプレートを用いた Zernike 型 X 線位相差顕微鏡

我々が開発を行っている Zernike 型の X 線位相差顕微鏡の概略図を Fig.1 に示す。以前の光学系では、最外輪帯幅 $dr_n=100\text{nm}$ のゾーンプレートを用いていたが、現在は $dr_n=50\text{nm}$ のゾーンプレートを用いている。X線エネルギーは 5keV で、このエネルギーに対するゾーンプレートの回折効率は約 4%(計算値)である。また、5keV の X 線に対するゾーンプレートの焦点距離は 16mm であるので、本光学系のセットアップでは倍率は 100 倍~225 倍まで可変である。位相板は、ゾーンプレートの後焦点面に設置し、本光学系では試料による回折光の位相を変調させるための、ピンホール型アルミニウム位相板(ホール径: $6\mu\text{m}$, 厚さ: $3\mu\text{m}$)を用いている。この位相板による回折光の位相変調は約 $\pi/2$ であるので、得られる像コントラストはネガティブコントラストとなる。Fig.1 に示す結像光学系では、コンデンサーを用いていないので、ゾーンプレートの片側のみを用いることで、+1 次光と -1 次光を分離して観察することができる(Fig.1 参照)。検出器には、直接撮像型の X 線 CCD(Hamamatsu Photonics, C4880, $12\mu\text{m}/\text{pixel}$, $1000(\text{H})\times 1018(\text{V})\text{pixels}$)を用いた。これにより、最大倍率での測定時では、物体面のピクセルサイズは $53\text{nm}/\text{pixel}$ となる。

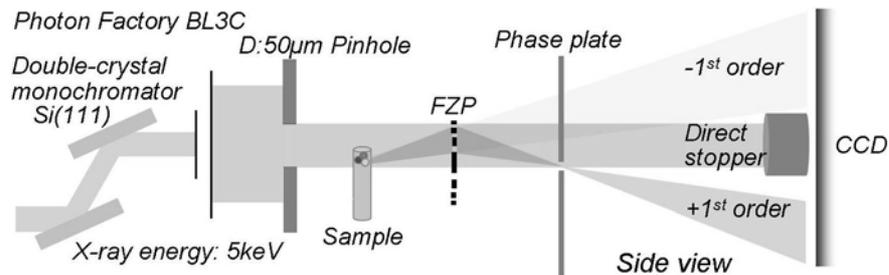


Fig.1 Schematic diagram of Zernike-type X-ray phase contrast microscope using a Fresnel zone plate at Photon Factory BL3C.

顕微鏡の分解能はテストパターン(タンタル 0.5 μm 厚)を用いて評価した。Fig.2 に、テストパターンの位相コントラスト像を示す。100nm 線幅のパターンまで解像できていることがわかる。光学系の倍率(最大 225 倍)と CCD のピクセルサイズを考慮すると、相応の分解能である。位相物体の測定として、ポリスチレンラテックス球(ϕ 2.8 μm)の位相コントラスト像を Fig.3(a)に示す。5keV の X 線に対する透過率は 99.5%であるので、位相試料としてみなしても差し支えない。吸収コントラスト像(Fig.3(b))ではほとんどコントラストは得られていないが、位相差にすることでラテックス球の分布を見ることができる。また、完全な位相物体ではなくても、吸収コントラストと併用することで非常に高い像コントラストを得ることができる。Fig.4(a)に示したのは、植物の根の先端部の位相コントラスト像で、Fig.4(b)の吸収コントラスト像では見られない微細な構造まで観察できていることがわかる。

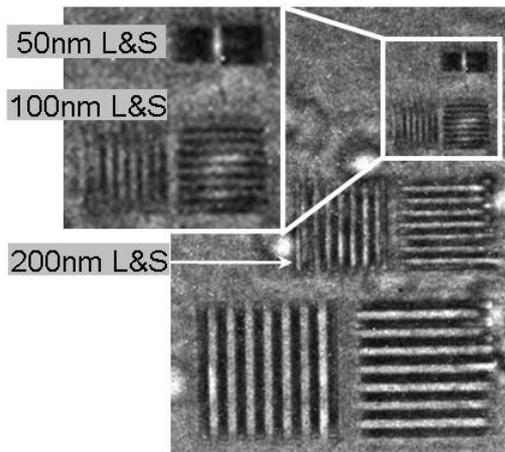


Fig.2 Phase contrast image of a test pattern made of 0.5 μm thick tantalum.

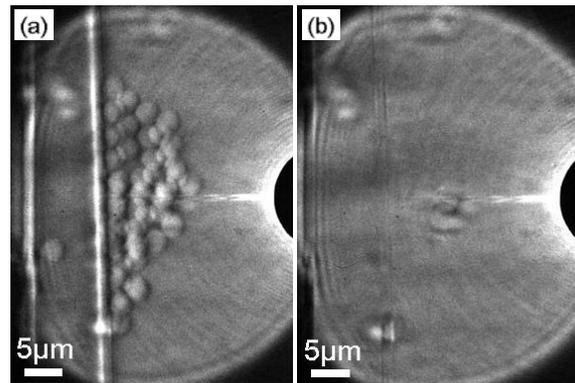


Fig.3 (a) Phase contrast and (b) absorption images of polystyrene latex particles with a diameter of 2.8 μm .

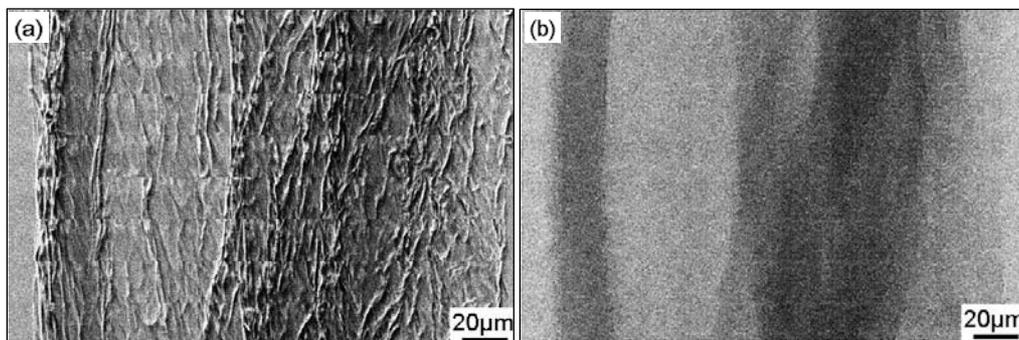


Fig.4 (a) Phase contrast and (b) absorption images of a root of alfalfa, which are composed of numerous sub-images

3. 位相コントラスト 3 次元イメージング

位相コントラストによる 3 次元イメージングにより、位相物体の可視化とその 3 次元形状の測定を行った。これは、結像光学系におけるトモグラフィーを位相コントラストモードで応用したものである。結像光学系におけるトモグラフィーの場合、対物素子の焦点深度内での結像が必要となるが、本光学系の場合、5keV の X 線に対するゾンプレートの焦点深度は約 40 μm であるので、結像に用いている+1 次光の視野とほぼ同じ大きさである。試料には、吸収ではコントラストが得られない微小生体試料を用いた。試料は、先端を細く引き伸ばしたキャピラリーチューブの先端に固定をした。まず、ヒメジョオンの花粉の位相コントラスト像と吸収コントラスト像を Fig.5(a)に示す。投影像は、1.8°間隔で 200 投影の撮影を行った。また、トモグラムの再構成には、畳み込み積分法を用いた。再構成によって得られた花粉の位相コントラスト 3 次元像を Fig.5(b)

に示す。また、再構成によって得られたスライス像を Fig.5(c)に示す。位相コントラストで試料のエッジ部分を強調した投影像からの再構成であるので、試料の外形が強調されて再構成されていることがわかる。これらのスライス像から、位相差投影像では球体のように見える花粉であるが、実際は所々にくぼみが存在していることがわかる。

また、Fig.6(a)に石松子と呼ばれる孢子の位相差像を示す。この試料も花粉と同様、吸収ではコントラストが得られない位相試料である。Fig.6(a)中の直線部分で再構成したものを Fig.6(b)に示す。試料周囲に、多数の針状構造が見られる。これは、石松子に特有のもので[8]、3次元で示すことにより(Fig.6(c))、それらが網目状の構造をしていることがわかる。

位相差顕微鏡の場合、定量的な3次元位相分布を求めることは困難であるが、位相試料の3次元形状情報が有効的に得られる方法だといえる。

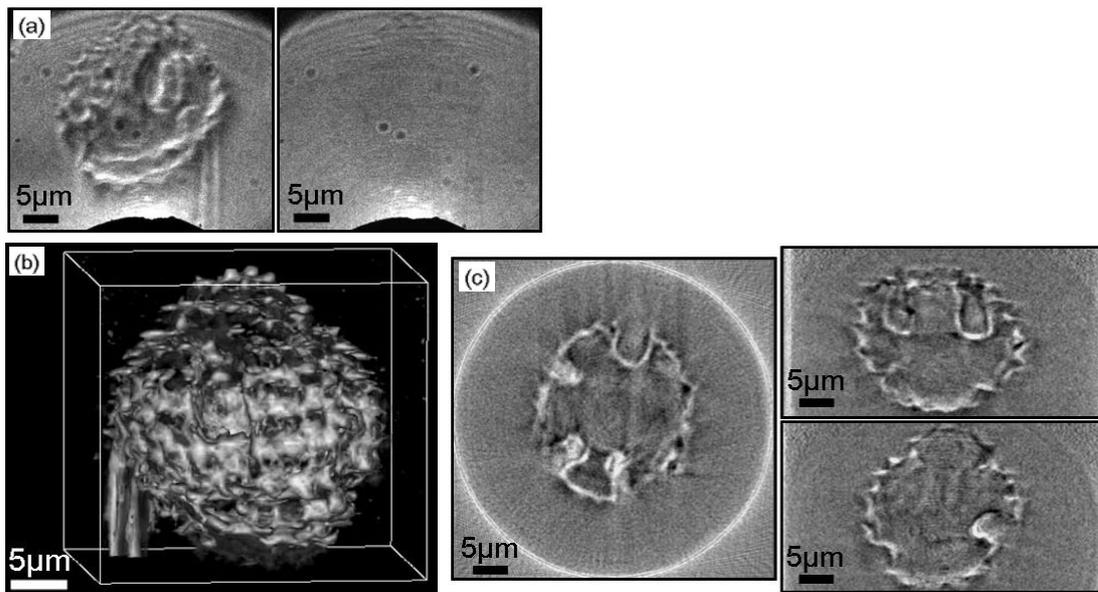


Fig.5 (a) Phase contrast (left) and absorption (right) images of an *Erigeron annuus* pollen. (b) Phase contrast 3D image. (c) Phase contrast sectional images reconstructed from 200 projection images. Exposure: 2min/projection.

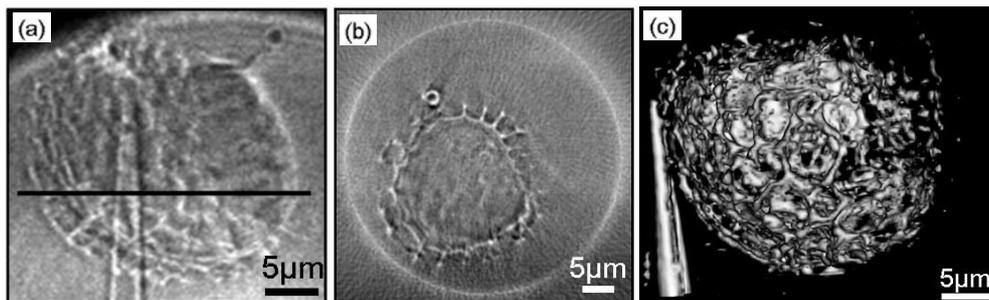


Fig.6 (a) Phase contrast image of *Lycopodium clavatum* spore. (b) Phase contrast sectional image at solid line shown in Fig. (a) reconstructed from 200 projection images. (c) Phase contrast 3D image. Exposure: 2min/projection.

4. まとめ

フォトンファクトリーに開発を行っている X 線位相差顕微鏡を、位相試料の3次元イメージングに応用することで、その可視化および3次元形状の解析に成功した。講演では、上記の成果に加え、シミュレーションにより、像コントラストと X 線エネルギーとの関係を求め、微小な生体構造を測定するうえで最適なエネルギー領域について提案する予定である。

References

- [1] N. Watanabe, M. Hoshino, M. Sato, Y. Takeda, T. Namiki, S. Aoki, A. Takeuchi and Y. Suzuki, proc. 8th Int. Conf. X-ray Microscopy, edited by S. Aoki, Y. Kagoshima and Y. Suzuki (IPAP, 2006), pp.372-374.
- [2] Y. Suzuki and A. Takeuchi, Rev. Sci. Instrum. **76** (2005), 093702.
- [3] K. Takahisa, T. Tsuji, K. Yoshida, H. Takano, Y. Tsusaka and Y. Kagoshima, Jpn. J. Appl. Phys. **45** (2006), L1159.
- [4] G. Schmahl, D. Rudolph, P. Guttman, G. Schneider, J. Thieme and B. Niemann, Rev. Sci. Instrum. **66** (1995), 1282.
- [5] S. Aoki, T. Namikawa, M. Hoshino and N. Watanabe, proc. 9th Int. Conf. Synchrotron Radiation Instrumentation, 2006, edited by J. Choi and S. Rah (AIP, 2007), pp. 1357-1360.
- [6] H. Yokosuka, N. Watanabe, T. Ohigashi, Y. Yoshida, S. Maeda, S. Aoki, Y. Suzuki, A. Takeuchi and H. Takano, J. Synchrotron Rad. **9** (2002), 179.
- [7] S. Aoki, M. Hoshino and N. Watanabe, J. X-ray Sci. Technol. **15** (2007), 65.
- [8] S. Aoki, T. Ohta, M. Nomura and S. Kikuta, Jpn. J. Appl. Phys. **23** (1984), 132.

タルボ効果を利用した高分解能 X 線位相イメージング

武田 佳彦¹, 高倉 樹², 鈴木 芳生³, 竹内晃久³, 百生 敦^{1,2}

東京大学新領域創成科学研究科¹, 東京大学工学部², SPring-8³

数 keV の X 線を利用する硬 X 線顕微鏡は厚みのあるサンプルの内部構造を高分解能で観察できるという特徴がある。しかし、C,N,O などの軽元素で構成されるサンプルを従来の吸収コントラスト硬 X 線顕微鏡で測定する場合、X 線吸収量の差が小さく、組織を描出することが困難となる。硬 X 線領域では、X 線が物体に入射したとき、吸収による強度変化よりも位相シフトのほうが 3 桁ほど大きい相互作用を示す。そのため、サンプルによる位相シフト量を測定する X 線位相イメージングは、従来の吸収コントラストの X 線イメージングよりも高感度で内部構造の観察をすることができる。

近年、2 枚の格子と検出器からなる単純な光学系で X 線波面の傾きを測定する X 線タルボ干渉計が考案された[1-5]。これらの研究は大視野の X 線位相イメージングを目指したものであるが、光学系がシンプルで、球面波 X 線に対しても位相イメージングを行えるという利点がある。そこで、本研究では X 線タルボ干渉計に注目し、簡便な光学系で定量的な位相測定が行える高分解能 X 線位相イメージングを試みた。

X 線タルボ干渉計は、タルボ効果により格子下流に発生する周期的強度分布に吸収格子を重ね、モアレ縞として測定する手法である。光路中に位相物体が存在すると周期的強度分布が変化し、それに伴いモアレ縞の強度分布も変化する。このモアレ縞の強度分布の変化から物体による X 線波面の傾きを定量的に測定することができる。X 線タルボ干渉計で得られる像の空間分解能は、検出器の分解能、格子の周期、フレネル回折によるボケによって制限され、10 数 μm 程度にとどまっている。

ここで格子と画像検出器をひとつの装置と考え、X 線タルボ干渉計は波面の傾きを測定する画像検出器とみなすことができる。そこで、図 1 のように X 線結像顕微鏡と X 線タルボ干渉計を組み合わせれば、拡大結像された像の波面の傾き分布を測定する高分解能の X 線位相イメージングを行えるものと期待される。

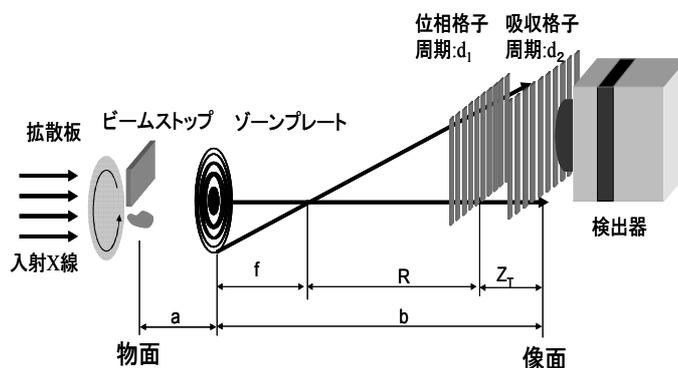


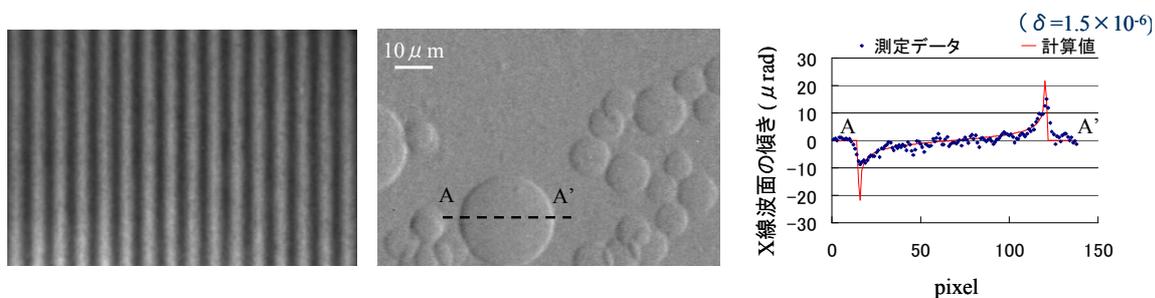
図 1 光学系

SPring-8 BL20XU で図 1 のように X 線結像顕微鏡と X 線タルボ干渉計を組み合わせた光学系を構築し、予備実験を行った。結像素子として直径 $320\ \mu\text{m}$ 、最外輪帯幅 100nm 、パターン高さ $1.6\ \mu\text{m}$ の Au ゾーンプレートをを用いた。ゾーンプレートの上流にディフューザーを

設置し、波長 1.0 \AA の X 線で照射した。ゾーンプレートの焦点距離 $f=320\text{mm}$ となり、ゾーンプレートの下流 $b=6307\text{mm}$ に蛍光体とカップリングレンズ、CCD カメラを組み合わせた実効画素サイズ $4.34 \mu\text{m}/\text{pixel}$ の画像検出器を設置すると $a=339\text{mm}$ 、倍率 18.7 倍の X 線結像顕微鏡となる。

結像素子に平面波 X 線が入射すると、焦点距離 f の位置でいったん集光し、その下流では発散しながら X 線が伝播していく。ここで集光点を仮想的な点光源とみなすと、位相格子の下流では球面波タルボ効果が発生する。明瞭な強度分布が発生する距離 Z_T は、X 線の波長 λ 、格子周期 d_1 、光源からの距離 R によって変化し、適切な位置に格子を配置すれば、顕微鏡像面にモアレ縞が発生するようにタルボ干渉計を構築することができる。画像検出器前面に周期 $d_2=8 \mu\text{m}$ 高さ $20 \mu\text{m}$ の Au 吸収格子を設置し、吸収格子の上流 $Z_T=339\text{mm}$ に周期 $d_1=8 \mu\text{m}$ 、パターン高さ $2 \mu\text{m}$ の Au 位相格子を設置して X 線タルボ干渉計を構築した。9 秒間露光したときに像面で観測された強度分布を図 2a) に示す。図 2a) では像面で明瞭なモアレ縞が発生することが確認された。

テストサンプルとしてポリスチレン (PS) 球を物面に設置し、位相イメージングを試みた。吸収格子をスキャンしながら 5 枚のモアレ縞を測定し、縞走査法を利用して波面の傾き分布を測定した。得られた X 線波面の傾き分布を図 2b) に示す。図 2b) では PS 球を明瞭に描出できている。図 2b) 中の破線部 A-A' に対応するプロファイルを図 2c) に示す。また、PS の屈折率を $\delta = 1.5 \times 10^{-6}$ と仮定し、PS 球による波面の傾き分布を計算した結果を合わせて図 2c) に示す。図 2c) では実験から得られたデータと計算値はよく一致しており、構築した位相コントラスト X 線結像顕微鏡は物面におかれたサンプルによる波面の傾きの変化を定量的に測定できているといえる。



a) 像面の強度分布 b) PS 球による波面の傾き分布 c) A-A' プロファイルと計算値

図 2 PS 球による X 線波面の傾きの測定

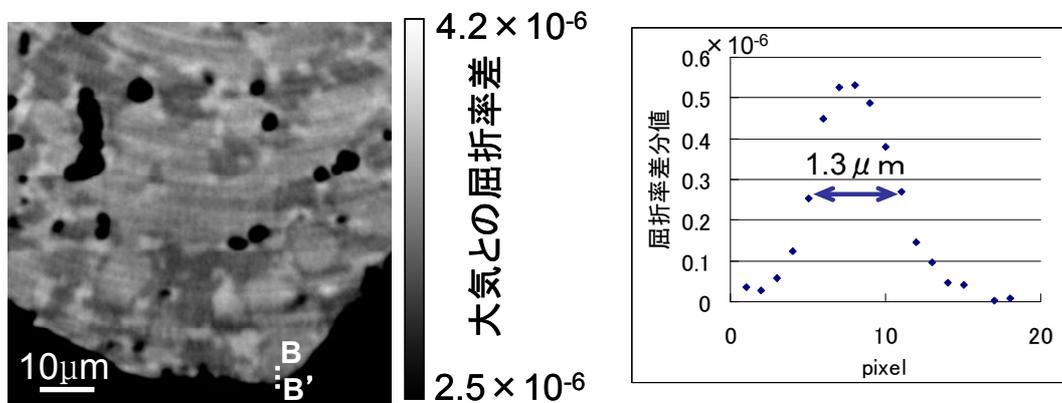
つぎに SPring-8 BL20XU で行った PS、ポリメチルメタクリレート (PMMA)、ポリブタジエン (PB) を体積比 1 : 1 : 0.5 の割合で混合し、 $200 \text{ }^\circ\text{C}$ で 1 時間アニーリングを行ったポリマーブレンドの観察結果を紹介する。ポリマーブレンドは種類の異なる複数のポリマーを混合したもので、混合するポリマーの種類やアニーリング条件に応じて複雑な相分離構造が形成される。これにより単一のポリマー材料よりもポリマーブレンドにすることにより機械的強度等の性質が向上する。したがって相分離構造の観察はポリマーブレンドの相分離過程を研究する上で重要である。しかし、今回サンプルとして選んだ多成分系のポリ

マーブレンドは、コントラスト増強が必要な光学顕微鏡や電子顕微鏡、X線吸収CTなどの従来の観察手法では各構造ごとに染色、エッチングをしなければならず、相分離構造の観察が困難なサンプルである。

最外輪体幅 86nm、直径 416 μm 、パターン高さ 700nm の Ta ゾーンプレートを設置し、ゾーンプレートの上流 $a=273\text{mm}$ にサンプルを設置して 9keV の X 線で照射した。蛍光体とカップリングレンズを組み合わせた実効画素サイズ 4.34 $\mu\text{m}/\text{pixel}$ の画像検出器を $b=5510\text{mm}$ に設置し、倍率 20.2 倍の X 線結像顕微鏡を構築した。画像検出器前面に周期 $d_2=8.3\mu\text{m}$ 、パターン高さ 7 μm の Au 吸収格子を設置し、その上流 $Z_1=243\text{mm}$ に周期 $d_1=8.0\mu\text{m}$ 、パターン高さ 0.9 μm の Au 位相格子を設置した。

180 度回転させながら波面の傾き分布を 360 回測定し、位相トモグラムの再生を行った。再生された位相トモグラムの一部を図 3a) に示す。図 3a) は大気との屈折率差を示しており、ポリマーブレンド片内部に屈折率の異なる構造が混在していることがわかる。また、図 3a) 中で示した点線部 B-B' のプロファイルの差分をとったものを図 3b) に示す。差分プロファイルの半値幅を空間分解能であるとする、このトモグラムの空間分解能はおよそ 1.3 μm であった。

本研究では、X 線結像顕微鏡と X 線タルボ干渉計を組み合わせることで、X 線波面の傾きを測定する定量的な位相イメージングを行うことに成功した。また、サンプルを回転させながら波面の傾き分布を測定し、1.3 μm の空間分解能で位相トモグラフィを行うことに成功した。



a)再生された位相トモグラム

b) B-B'の差分プロファイル

図 3 PS/PMMA/PB ポリマーブレンド片の位相トモグラフィ

[1] A. Momose, S. Kawamoto, I. Koyama, Y. Hamaishi, K. Takai and Y. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys. 42, L866 (2003)
 [2] A. Momose, S. Kawamoto, I. Koyama and Y. Suzuki, SPIE Proc. , 5535, 352 (2004)
 [2] T. Weitkamp, B. Nohammer, A. Diaz, C. David, F. Pfeiffer, M. Stampanoni, P. Cloetens and E. Ziegler, Appl. Phys. Lett. , 86, 054101 (2005)
 [4] E. Pfeiffer, T. Weitkamp, O. Buck and C. David, Nature Phys. 2, 258 (2006)
 [5] A. Momose, W. Yashiro, Y. Takeda, Y. Suzuki and T. Hattori, Jpn. J. Appl. Phys. 45, 5254 (2006)

X線微分位相顕微鏡による骨微細構造の解析： ツチ骨における骨細胞、骨細管と微小血管

佐野元市郎^a, 南郷脩史^b, 久保田省吾^b, 武田 佳彦^c, 百生敦,^c 松尾光一^a
Gen-ichiro Sano^a, Nobuhito Nango^b, Shogo Kubota^b,
Yoshihiro Takeda^c, Atsushi Momose^c, Koichi Matsuo^a

^a慶應義塾大学医学部, ^bラトックシステムエンジニアリング,
^c東京大学大学院新領域創成科学研究科

^aKeio University School of Medicine, ^bRatoc systems engineering Co., Ltd.,
^cUniversity of Tokyo School of Frontier Science

骨細胞は、骨基質内で細胞間に直径250 nm程度の骨細管のネットワークを構築しており、微小骨折やメカニカルストレスを感知している。骨細管ネットワークの3次元構造を明らかにするために、マウス中耳より調製したツチ骨の短突起を、デフォーカス状態での吸収CTやタルボ顕微鏡を用いたCTにより撮影し、骨細胞・血管及びその周囲の微細構造を描出した。骨リモデリングの基盤構造を理解できれば、骨粗鬆症などの疾患に対する新たな治療法の開発に寄与すると期待される。

はじめに：

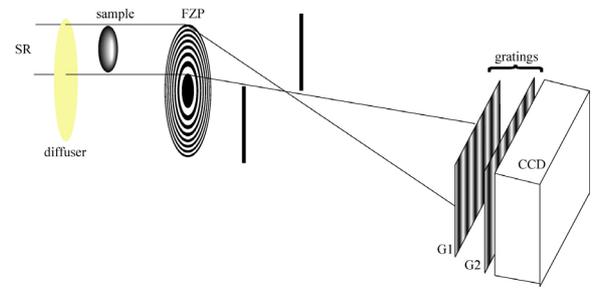
骨リモデリング、すなわち破骨細胞（osteoclast）による骨吸収と、それに続く骨芽細胞（osteoblast）による骨形成における吸収と形成のバランスにより、骨密度や骨の微細構造が維持されている。骨細胞は骨形成の過程で骨基質に埋め込まれる骨芽細胞由来の細胞で、直径 250 nm 程度の骨細管（canaliculi）と呼ばれるネットワークを細胞間に構築しており、微小骨折の検出・修復過程の促進、メカニカルストレスの受容などの機能を持つと考えられている（Ref.1）。また骨や骨髄には微小血管が走行しており、骨量や骨構造・骨質を維持する機構の一端を担っていると考えられる。

ところが、骨細胞や微小血管などの超微細構造の解析には、透過型電子顕微鏡や共焦点レーザー顕微鏡などによる観察が用いられているものの、得られる3次元的情報は限られている。骨の超微細構造を3次元的に明らかにすることで初めて、骨リモデリングにおける構造と機能を結びつけることが可能になる。本研究では、ツチ骨の短突起部分における骨細胞、微小血管および骨細管をデフォーカス状態での吸収CTで撮影、高感度・高分解解析能でイメージングする。またタルボ顕微鏡を用いたCTにより、吸収CTと同じサンプルを解析し、骨細胞・微小血管および骨細管の三次元構造と骨基質の新旧（石灰化の程度の差）とを広範囲において比較し、骨微小構造を明らかにすることを目的とした。

材料と方法：

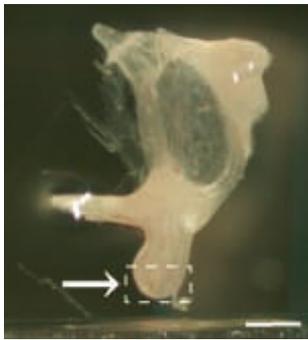
耳小骨の調製は骨吸収が過剰に誘導される OCIF 遺伝子欠損マウス（Ref. 2）と、骨が増える遺伝子改変マウスを3種：Fral 遺伝子トランスジェニックマウスと、c-Fos または TRAF6 遺伝子の欠損マウス（Ref. 3, 4, 5）より行われた。またこれらの対照群として同週齢の野生型マウス（3, 6, 21, 31 週齢、系統 C57BL/6J）よりツチ骨が調製された。ツチ骨を右中耳より実体顕微鏡下で単離し、70%エタノール中で固定、80, 90, 100% と徐々にアルコール濃度を上昇させ脱水した。その後アルコールを完全に蒸発させ乾燥させた。このようにして調製されたツチ骨は、直径 1 mm の金属棒の先端部分に溝を掘ったものを慶應義塾大学医学部の医療機器開発センターで作成し、これに両面テープで固定した。これらの検体をSPring-8 に持ち込み、デフォーカス状態での吸収CT、およびタルボ顕微鏡を用いたCTで撮影・解析した（Ref. 6）。Fig. 3.に本実験で微分位相コントラストを得るために使用した顕微鏡構成を示す。

Fig. 1. Experimental set up of differential phase X-ray imaging microscopy. When refraction contrast images were acquired, the gratings were removed and the sample was slightly displaced along the optical axis.



デフォーカス状態での吸収CTでは、試料位置を光軸方向に6 mm下流にシフトさせてフォーカスをずらして撮影し、屈折率の微分像（エッジ）を強調した。X線のエネルギーは9 keVに設定し、顕微鏡の倍率は20.2であった。蓄積時間が2秒、2000投影、画素サイズが250 nm、画像サイズ1344x1017の条件で16サンプルについて撮影を行った。また一部のFra1トランスジェニックマウス、及び野生型マウスより得られたサンプルに関してはタルボ干渉計を入れ、蓄積時間が5秒、500 - 1000 投影、画素サイズが250 nm、画像サイズ1344x1017で3サンプルについて解析を行った。

結果と考察：



我々は骨微小構造のより広範囲にわたる解析を行うため、マウス耳小骨を解析した。外部より音として鼓膜に伝わった振動は中耳にある耳小骨によって内耳に伝える。哺乳類ではこの振動は鼓膜よりツチ骨、キヌタ骨、アブミ骨の順で内耳に送られる。本実験ではマウス個体間ではほぼ同じ形状を持ち、かつ直径が約300 μmとSPring-8の放射光による解析に適切なサイズを持つツチ骨の短突起 (processes brevis, Fig. 2. arrow) を解析した。

Fig. 2. A malleus from wild-type mouse right middle ear region and its processes brevis (arrow). Dotted area was analyzed (see below). Scale bar, 300 μm

得られた画像をもとにノイズの除去、および3次元再構築を撮影されたすべてのサンプルについて現在進めている。これまでデフォーカス状態での吸収CTで解析したサンプルについては骨細胞、血管、また骨細管と思われる構造が検出された(Fig.3.)。

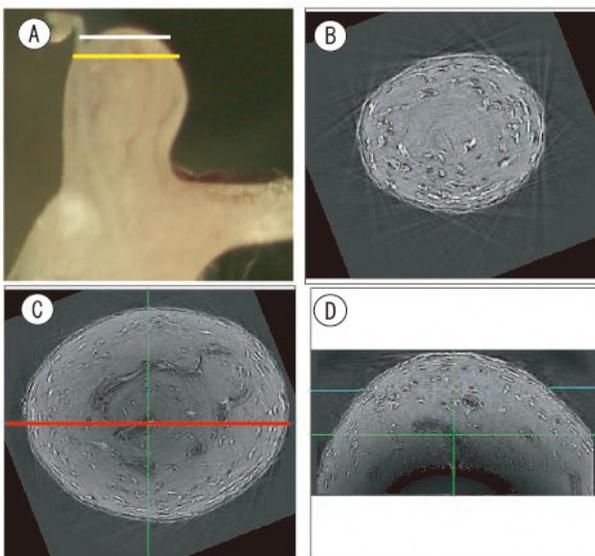


Fig. 3. (A): Microscopic image of a malleus from a 21 weeks old wild-type mouse. (B, C, D): Refraction contrast images of the malleus. (B, C): Top cross sectional views - cut along a white (B) or a yellow (C) line in (A) (D): Sectional side view - cut along a red line in (C). Note that osteocytes, vessels, and structures possibly be osteocyte canaliculi are visible in the malleal processes brevis.

またタルボ干渉計を用いて撮影した画像を解析したところ、特定の部位の骨基質が他の部位の骨基質と質的に異なることを示唆する画像が得られた。

デフォーカス状態での吸収CTより得られた画像をより詳細に解析することによって骨細胞ネットワークや骨内微小血管系を3次的に描出できる可能性がある。骨リモデリングの基盤をなす構造を解析できれば骨細胞の細胞生物学的理解が深まり、ひいては骨粗鬆症などの骨量異常によってもたらされる疾患に対する新たな治療法の開発に結びつくこと期待される。

今後の課題：

今回の撮影では異なる週齢間の野生型マウスにおいて、また同週齢の野生型とトランスジェニックマウスのツチ骨における骨微小構造を比較するという当初の目的が、実行可能であ

ることがわかった。現在 3 次元画像の再構築を、撮影したすべてのサンプルについて行っている。これらの比較群において、骨微小構造に統計的に有意な違いがあるかどうかを検討するには、特徴的構造を定量化する必要がある、具体的な方法は今後の課題である。

参考文献：

- 1) Tatsumi *et al*, Targeted ablation of osteocytes induces osteoporosis with defective mechanotransduction. *Cell Metab.* 5, 464-475 (2007)
- 2) Kanzaki *et al*, Resorption of auditory ossicles and hearing loss in mice lacking osteoprotegerin. *Bone* 39, 414-419 (2006)
- 3) Jochum *et al*, Increased bone formation and osteosclerosis in mice overexpressing the transcription factor Fra-1. *Nat. Med.* 6, 980-984 (2000)
- 4) Wang *et al*, Bone and haematopoietic defects in mice lacking *c-fos*. *Nature* 360, 741-745 (1992)
- 5) Naito *et al*, Severe osteopetrosis, defective interleukin-1 signaling and lymph node organogenesis in TRAF6-deficient mice. *Genes Cells* 4, 353-362 (1999)
- 6) Momose *et al*, Phase tomography by X-ray Talbot interferometry for biological imaging. *Jpn J Appl Phys.* 45, 5254-5262 (2006)

キーワード：

骨リモデリング：局所でおこる破骨細胞による骨吸収と、それに引き続く骨芽細胞による骨形成。このバランスが骨吸収に偏ると骨量が減少し、骨粗鬆症などをおこす。

骨細胞：骨芽細胞は骨形成後、骨基質の中に埋もれて骨細胞となる。近年、骨細胞が骨リモデリングの制御に関与することが明らかになったが、その詳しいメカニズムは明らかになっていない。

骨細管：骨基質に埋もれる骨細胞間、もしくは骨細胞と骨表面などをつなぐ直径 300 nm 程の管。この骨細管中に骨細胞は樹状突起を伸ばし、自身を維持する栄養を得たり、骨基質に生じた微小骨折や骨へのメカニカルストレスを感知したりして、骨リモデリングを誘導するとされている。

X線暗視野法による屈折型トモシンセシスの現状

島雄大介¹、国定俊之²、杉山弘³、安藤正海⁴

¹茨城県立医療大学、²岡山大学附属病院、³KEK-PF、⁴東京理科大学

1. はじめに

被写体中で屈折を受けた X 線を検出し画像化することで、従来法である X 線吸収コントラスト法では描出が困難な軟組織を描出することが可能となる。我々は、屈折 X 線の検出法としてラウエ型シリコンアナライザによる X 線暗視野法¹⁾を用いて、整形外科領域の臨床利用に向けた応用研究を行っている。

これまで、人体から摘出した指関節の撮影に本手法を応用し、微細な関節軟骨欠損や軟骨下骨の辺縁不整が描出できることから、関節疾患の早期画像診断に有用であることを報告してきた^{2, 3)}。ただし、本手法は投影像の取得に限られていたため関心領域を精密に描出するには同領域が周辺の構造物と重ならないように投影方向を工夫することが必要であった。

これまでの X 線暗視野投影像から得られる情報に加え、さらに深さ方向の情報を得るには断層像の取得が望まれる。断層像取得に向けては一般的に本手法の CT 化が考えられるが、放射光 X 線のように光源が固定されている場合には被写体を 180° 回転させる必要があり、臨床利用を見据えた場合には困難を伴う。

そこで我々は、10° ~ 20° 程度の回転角で被写体中の基準面から任意の深さの断層像が得られるシフト加算法によるトモシンセシス^{4, 5)}を X 線暗視野法に応用することとした⁶⁾。このトモシンセシスでは 1 枚の通常の投影像を得るのに必要な X 線量を、生データとしての各投影方向からの投影像の数で分配する。このため、被曝線量の増加なしに任意の深さにおける断層像が得られるという利点がある。

2. シフト加算法の原理と X 線暗視野法への応用

トモシンセシスの基本概念は 1930 年代に考案され⁴⁾、現在、そのアルゴリズムは主に「シフト加算法(shift-and-add method)」、「フィルター処理逆投影法(filtered back projection)」、「反復代数法(iterative algebraic technique)」の 3 つに分類される。本研究ではこれらのうち最も単純なシフト加算法の X 線暗視野法への応用を試みた。

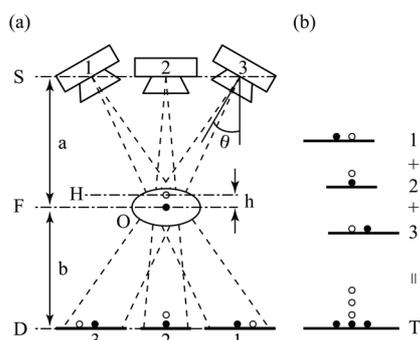
図 1 I に、臨床利用されているシフト加算法の原理(Twinning の原理)を示す。被写体 O の基準面 F と検出器 D が常に平行であり、F と X 線管球 S の距離が常に一定であることを特徴とする。ここで、各距離と S の振角を図 1 I 中にあるように表記すると、拡大率 M とシフト量 d は以下の式で表される。

$$M = (a + b)/(a - h) \quad (1)$$

$$d = hM \tan \theta \quad (2)$$

例えば、F から h だけ S 側にある平面 H 上の構造物(○)は、図 1 I (a)中の S : 1, 2, 3 で撮影された D : 1, 2, 3 により得られる画像を、図 1 I (b)に示すように式(2)に従い d だけシフトさせたものを加算することで焦点を合わせることができる。このとき H 上にない構造物(例えば●)

I. Conventional 'Twinning principle'



II. Refraction-Enhanced Tomosynthesis by X-ray Dark-Field Imaging

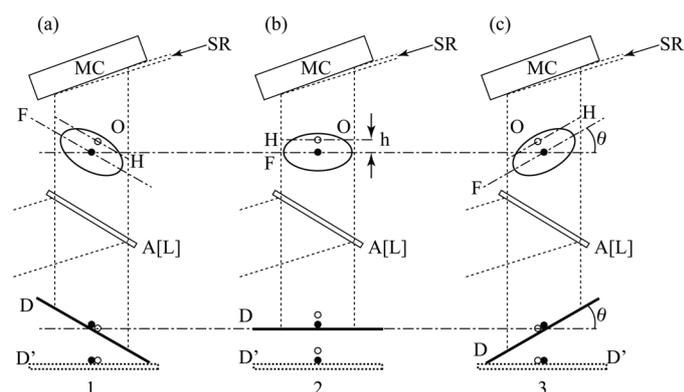


図 1. シフト加算法によるトモシンセシスの原理

は、周辺に散らされて、量かされる。このようにして、 $D: 1, 2, 3$ で得られる1組の投影画像から任意の深さにおける断層像を再構成できる。ただし、得られる断層像には常に断層面以外にある構造物が量かされて重畳するため、各種の量け除去処理法が開発されている⁵⁾。

この *Twinning* の原理を X 線暗視野法で再現するには、図 1 II に示すように O と D を同期して回転させて投影画像を取得する必要があるが、 D' のように検出器を固定していても D への射影変換により補正が可能である。さらに X 線暗視野法では平行 X 線を用いるため、 $M = 1$ となり、シフト量は、

$$d = h \tan \theta \quad (3)$$

と単純化される。

3. 方法

実験は PF の BL14B で行った。ハッチ内に図 1 II に示す X 線暗視野法の光学系を組み、ビームラインの二結晶モノクロメータ: $\text{Si}(333)$ により得られる 36.0 keV の単色 X 線を利用した。モノクロコリメータ MC とラウエ型アナライザ $A[L]$ の回折面は $\text{Si}(220)$ を利用し、MC は非対称結晶 (非対称角: 4.9°)、 $A[L]$ は対称結晶とした。画像検出器には高解像度タイプである乳房撮影用フィルムを用い、さらに高解像度画像取得のため増感紙は用いなかった。試料はホルマリン固定された御献体から切断した左第二指近位指節関節とした。

試料の回転角は $\pm 5^\circ$ とし、 1° ステップでトモシンセシス用投影画像 (生データ) を 11 枚取得した。今回の撮影系では、通常の X 線暗視野投影画像を得るのに最適な撮影時間が 55 秒であったため、11 枚の生データの各撮影時間を 5 秒とした。これにより 1 枚の X 線暗視野投影画像を得ると同等の撮影線量で、1 組の生データが得られることになる。これら 11 枚の生データを式(3)に従い、 $h = 5 \text{ mm}$ (関節間隙が最も広い位置) としてシフト量を求め、シフト加算を行った。

また、比較のため $A[L]$ をブラッグ条件から十分にはずして同様の処理を行い吸収コントラスト画像も取得した。

4. 結果

図 2 に、(a)通常の X 線暗視野投影画像、(b)11 枚の生データのうちの 1 枚、(c)シフト加算により

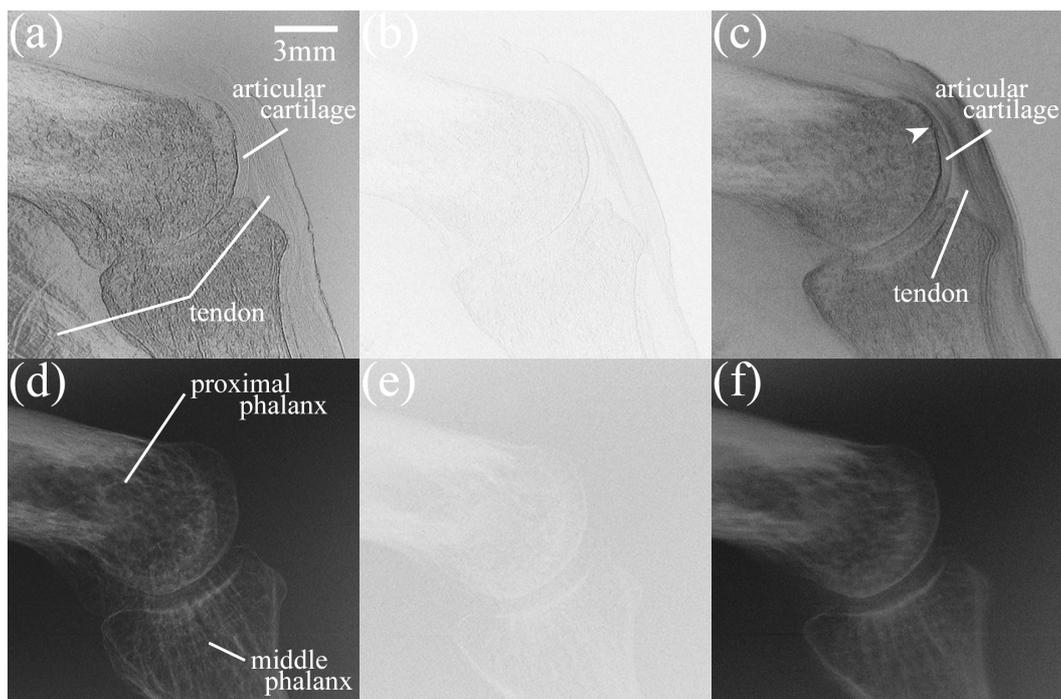


図2. 近位指節関節の X 線暗視野法と吸収コントラスト法による投影像・生データ・断層像

再構成した X 線暗視野断層像、(d)~(f)には(a)~(c)に対応する吸収コントラスト画像を示した。(d)では骨のみの描出となっているが、(a)では骨に加え関節軟骨や腱も同時に描出されている。(b)、(e)はそれぞれ(a)、(d)の 11 分の 1 の線量で撮影したもので、線量不足のため写真濃度が足りない。一方、11 枚の生データをシフトし加算して得た断層像(c)、(f)では十分な写真濃度が得られている。ここで注目すべき点は、屈折コントラストを維持した X 線暗視野断層像が通常の X 線暗視野投影像と同線量で得られ、さらに、この断層像でのみ軟骨下骨の微小欠損部（矢頭）が検出されているところにある。

5. まとめ

本研究では、X 線暗視野法にシフト加算法によるトモシンセシスの原理を応用し、屈折型断層像を取得した。これにより、従来法では不可視な関節軟骨や腱が描出された断層像を得ることができ、さらに X 線暗視野投影像では重畳により隠れていた軟骨下骨の微小欠損部を明瞭に描出できることを示した。これらの描出能は、関節に異常が現れる関節リウマチや変形性関節炎等の早期診断に有用であろう。本手法には放射光施設が必須という問題は依然として残るが、180° 方向からの投影データが必要な各種 CT とは違い、本手法は撮影線量の増加を伴わずに屈折型断層像が得られるため、より現実的に臨床利用を指向した手法と言える。

参考文献

- 1) M. Ando, et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) L844.
- 2) D. Shimao, et al.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A **548** (2005) 129.
- 3) D. Shimao, et al.: Appl. Radiat. Isot. **64** (2006) 868.
- 4) B. G. Ziedses des Plantes: Acta Radiol. **13** (1932) 182 [in German].
- 5) J. T. Dobbins III, et al.: Phys. Med. Biol. **48** (2003) R65.
- 6) D. Shimao, et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **46** (2007) L608.

X線顕微干涉計による高感度・高空間分解能位相イメージング

小山貴久、辻 卓也、吉田圭佑、高野秀和、籠島 靖

兵庫県立大学大学院物質理学研究科

1. はじめに

近年の半導体産業の基盤技術である超精密・超微細加工技術の進歩により、ゾーンプレート(ZP)に代表される高精度の X 線レンズの製作が可能となり、また SPring-8 に代表される第三世代放射光施設の登場により、高輝度な X 線源が利用可能となったため、硬 X 線顕微鏡の開発研究が急速に進んでいる。現在、X 線光学素子を拡大レンズに用いた結像型硬 X 線顕微鏡では 50 nm を超える空間分解能が得られている。さらに、X 線の吸収だけでなく位相の変化を画像のコントラストに結びつけた位相イメージングの手法も開発が進んでおり、高感度・高分解能な顕微鏡像が得られつつある。

結像型硬 X 線顕微鏡の位相イメージングを用いた手法としては、Zernike の位相差顕微鏡¹⁻³⁾や微分干涉顕微鏡⁴⁾がある。これらの手法では高い画像のコントラストは得られるものの、画像のコントラストと位相シフトとの環形は簡単な関数で表すことができないため、定量的な位相計測は困難である。他の顕微鏡的な位相イメージングの手法には、X 線ホログラフィー^{5,6)}、X 線回折顕微鏡^{7,8)}、走査型 X 線顕微鏡⁹⁻¹²⁾などがあり、高空間分解能かつ定量的な位相情報が得られている。

我々は、顕微鏡の結像面に参照波を重ねた新奇な光学系(顕微干涉計)を世界に先駆けて考案し、高感度・高分解能位相イメージングを行っている。結像面に参照波を重ねることで、実空間で試料を透過した波面の振幅と位相を定量的に求めることができる。また、二次元像を比較的短時間で得ることができ三次元イメージングへと発展させやすいという特徴がある。開発の初期ではツイン ZP を用いていたが^{13,14)}、さらに発展型として環状 ZP を用いて顕微干涉計を構築した¹⁵⁾。ここでは構築した光学系と得られた結果を報告する。

2. X線顕微干涉計の光学系

本研究で構築した顕微干涉計の光学系を図 1 に示す。実験は SPring-8 の兵庫県 ID ビームライン(BL24XU)で行った。アンジュレータ光からシリコン二結晶分光器を用いて 8 keV に単色化し、実験ハッチ C1 に導く。直径、焦点距離の異なる 2 種類の ZP を焦点位置が点 F に重なるように配置する。参照波用の ZP として、中心部分を対物 ZP (Objective ZP : OZP) の直径分だけゾーンパターンを形成しない環状 ZP (Annular ZP : AZP)を考案し作製した。OZP(AZP)のパラメータは直径:180 μm (330 μm)、最外輪帯幅:50 nm (50 nm)、厚さ:0.8 μm (0.51 μm)、焦点距離(@8 keV):58.1 mm (106.4. mm)、理想的な回折効率(@8keV):13.6% (6.26%)である。ZP の材質はタンタルで NTT-AT 社に製作を依頼した。これらとスリットを組み合わせることによって、それぞれの ZP の+1 次回折光のみを干渉させることができる。干渉顕

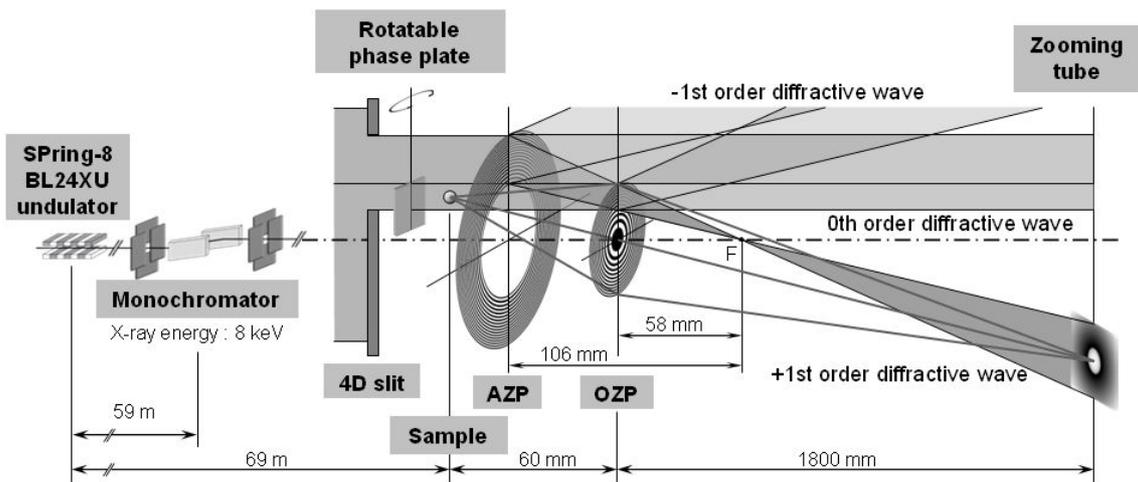


図1. 光学系の模式図

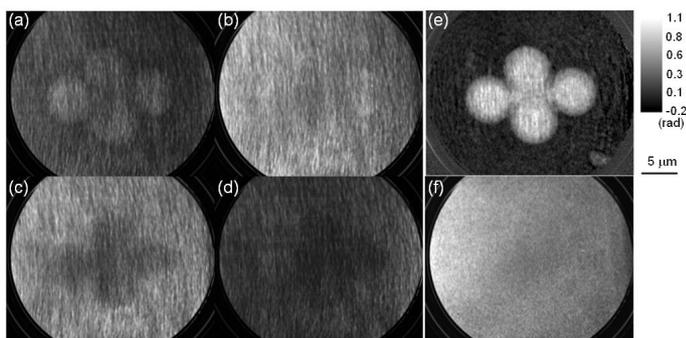
域を最大とするためには、2枚のZPの開口数を一致させればよい。開口数は最外輪帯幅 Δr_N で決まり、ともに $\Delta r_N = 50 \text{ nm}$ に設定した。顕微鏡の空間分解能Res.も開口数、すなわち最外輪帯幅で決まり $\text{Res.} = 1.22\Delta r_N$ と与えられるので、約60 nmの空間分解能が期待できる。ZPの回折効率はその材質の厚さで決まる。そこで、干渉縞の可視度が最大となるように、すなわち、点Fから広がる2つの球面波の検出器上での振幅が等しくなるようにそれぞれのZPのタンタルの厚さを最適化した。

顕微干渉計は波面分割型の干渉計で、空間的、時間的に離れた2光束の干渉となり干渉条件を見積もっておく必要がある。本光学系による最大の空間的な光路差は幾何学的に求められ、鉛直方向に75 μm (D_V)、水平方向に12.5 μm (D_H)である。SPring-8の標準的なアンジュレータ放射光の空間的コヒーレンスは鉛直方向では数百 μm (S_V)、水平方向では10 μm 程度 (S_H)であるので、本光学系においては鉛直方向では完全にコヒーレント ($S_V > D_V$)、水平方向では同程度 ($S_H \sim D_H$)であり、干渉計測を行うために十分な可視度の干渉縞が期待できる。また、光学系による最大の時間的な光路差も幾何学的に求められ、50 nm程度である。Si二結晶分光器のエネルギー分解能から時間的コヒーレンスは0.5 μm 程度であるので、時間的コヒーレンスの条件は満たされている。

この干渉計はZPにより形成された2つの二次点光源による球面波の干渉とみなせ、2種類のZPを焦点位置が点Fに重なるように配置すれば形成される干渉図形をフリンジレスにできる。OZPによって試料が検出器上に拡大結像され、AZPに入射したX線は参照波となって検出器上で重なり合い干渉領域が形成される。試料を通ったX線は、試料の形状・密度に応じて位相が変化し、それに伴い干渉図形も変化する。この変化量を調べることで試料の定量的な位相計測が可能となる。物体波の光路、すなわちOZPに入射する光の光路に位相板を配置して縞走査法が行えるようにした。位相板を回転ステージに取り付け、回転させることによって実効的な厚さを変化でき、参照波と物体波の相対位相を制御した。干渉縞の位相をシフトさせた複数の干渉像から再構成を行い、位相シフト像を得た。X線光学系の倍率は30倍とし、干渉像の観察には、画像検出器として浜松ホトニクス社製のズームング管を用いた。

3. 位相物体の観察

位相物体の観察として粒径 $7\ \mu\text{m}$ のポリスチレン微粒子を観察した。ポリスチレンの密度は $1.1\ \text{g/cm}^3$ であり、 $8\ \text{keV}$ における屈折率の1からのずれ量 δ は 3.85×10^{-6} である。図2に観察結果を示す。



(a)~(d)は干渉像、(e)は位相シフト像、(f)は吸収像である。露光時間は干渉像1枚あたり40秒である。

図2. ポリスチレン微粒子の観察例 (a)-(d)位相板を回転させ物体波の位相を $\pi/2$ 毎に変えた干渉像。(e)4ステップの縞走査法により得られた位相シフト像。(f)吸収像

透過率が99.7%であるので吸収像では観察することはできない。一方、位相シフト像では4つの微粒子を鮮明に観察できている。このことから位相コントラストは吸収コントラストに比べて遙かに高感度であることが確認できた。また、図2(e)でバックグラウンド領域の位相シフトの標準偏差は $\sigma = 0.049\ \text{rad}$ であり、位相検出感度を $\text{MDL} = 2\pi\lambda/(3\sigma)$ で定義すれば $\lambda/40$ となり高い検出感度を実現することができた。さらに、空間分解能を評価するためCu #2000メッシュのエッジ構造を観察し、その立ち上がりから位相シフト像の空間分解能は60nmと見積もられた。

4. 顕微位相トモグラフィ

試料を回転ステージの上に乗せ、複数の投影方向から位相シフト像を取得すれば顕微位相トモグラフィが実行できる。試料にはポリエステル繊維の中に酸化チタン微粒子が添加された機能性ポリマー繊維を用いた。図3に顕微位相CTの結果を示す。1.8°毎に180°回転させ、それぞれの回転角で4ステップの縞走査を行い、100投影の位相シフト像を取得した。露光時間は干渉像1枚あたり40秒である。図3は三次元レンダリング表示させたものである。微粒子の分布がわかるようにポリエステル成分は半透明に表示させてある。微粒子の形状、空間分布がよくわかる。さらに、図3の右側に微粒子ひとつの拡大像を示した。粒径約200nmの微粒子が捉えられていることがわかる。

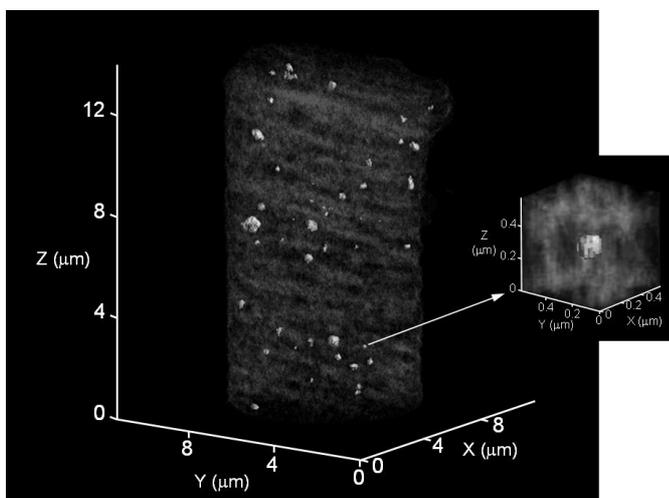


図3. 酸化チタン微粒子が添加されたポリエステル繊維の位相トモグラフィ。微粒子ひとつを右側に拡大。ポリエステルの成分を半透明に表示してある。

5. まとめ

SPring-8の高輝度アンジュレータ放射光を用いて硬X線顕微干渉計を世界に先駆けて構

築した。環状 ZP を考案・作製し、これを参照波形成用 ZP として用いることにより、干渉縞の間隔や方向が自由に制御でき、視野全体の強度分布が均一となるフリンジレスな干渉図形までも形成することができた。縞走査法を適用し、試料による X 線の位相変化を定量的に計測することができた。空間分解能は 60 nm、位相検出感度は $\lambda/40$ であり、高い空間分解能と位相検出能力を有していることがわかった。実際に位相物体を観察し、吸収コントラストよりもはるかに高感度であることが確認できた。機能性ポリマー繊維の三次元観察に応用し、本顕微干涉計が弱吸収試料のナノメートルスケールの非破壊三次元内部構造観察に有効であることを実証した。

参考文献

- 1) Y. Kagoshima, T. Ibuki, Y. Yokoyama, Y. Tsusaka, J. Matsui, K. Takai and M. Aino: Jpn. J. Appl. Phys. **40**, L1190 (2001).
- 2) H. Yokosuka, N. Watanabe, T. Ohigashi, S. Aoki and M. Ando: J. Phys. IV France **104**, 591 (2003).
- 3) U. Neuhausler, G. Schneider, W. Ludwig and D. Hambach: J. Phys. IV France **104**, 567 (2003).
- 4) T. Wilhein, B. Kaulich, E. D. Fabrizio, F. Romanato, S. Cabrini and J. Susini: Appl. Phys. Lett. **78**, 2082 (2001).
- 5) 渡辺紀生, 青木貞雄: 放射光 **16**, 1 (2003).
- 6) S. Eisebitt, J. Lüning, W. F. Schlotter, M. Lörger, O. Hellwig, W. Eberhardt and J. Stöhr: Nature **432**, 885 (2004).
- 7) J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz and D. Sayre: Nature **400**, 342 (1999).
- 8) 西野吉則, 石川哲也: 放射光 **19**, 3 (2006).
- 9) H. N. Chapman, C. Jacobsen and S. Williams: Rev. Sci. Instrum. **66**, 1332 (1995).
- 10) M. Feser, T. Beetz, C. Jacobsen, J. Kirz, S. Wirick, A. Stein and T. Schäfer: Proc. SPIE **4506**, 146 (2001).
- 11) H. Takano, K. Uesugi, A. Takeuchi, K. Takai and Y. Suzuki: J. Phys. IV France **104**, 41 (2003).
- 12) Y. Kagoshima, K. Shimose, T. Koyama, I. Wada, A. Saikubo, K. Hayashi, Y. Tsusaka and J. Matsui: Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L1449 (2004).
- 13) T. Koyama, Y. Kagoshima, I. Wada, A. Saikubo, K. Shimose, K. Hayashi, Y. Tsusaka and J. Matsui: Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L421 (2004).
- 14) T. Koyama, H. Takano, Y. Tsusaka and Y. Kagoshima: Spectrochimica Acta B **62** 603 (2007).
- 15) T. Koyama, T. Tsuji, K. Yoshida, H. Takano, Y. Tsusaka and Y. Kagoshima: Jpn. J. Appl. Phys. **45**, L1159 (2006).

軟 X 線フーリエ変換ホログラフィ

Soft x-ray Fourier transform holography

小野寛太

高エネルギー加速器研究機構

kanta.ono@kek.jp

われわれはナノスケール物質の構造・電子状態・化学状態・磁気状態を解明するために、コヒーレント軟 X 線放射光を用いて、レンズを用いない顕微分光手法である軟 X 線フーリエ変換ホログラフィ手法を開発し、ナノ材料、ナノバイオ材料のイメージングを行うことを目的として研究を進めている。

近年、物質あるいは生体の機能を解明するために、ナノ領域でのイメージング技術が必要とされている。特に、半導体デバイス、磁気記録デバイスに代表される、情報通信に用いられる素子のサイズは既に数 10nm 領域に達しており、これらの素子のさらなる開発を進めるためには、ナノスケールでの電子状態・磁気状態の解明が必要不可欠である。また、生体物質に目を向けると、タンパク質の結晶構造解析などにより生体機能の解明がめざましいが、結晶を作りにくい生体物質における実空間でのイメージング技術およびその技術を用いた機能解明が待ち望まれている。

近年、コヒーレント放射光を用いた新しい顕微分光手法として、X 線フーリエ変換ホログラフィを用いたレンズレス X 線顕微分光という手法が注目を集めている。ホログラフィの原理は Gabor により 1948 年に提案された。また、レンズレスフーリエ変換ホログラフィの手法はその後 Stroke らにより提唱された。ホログラフィ手法を X 線領域で実現する X 線ホログラフィの最初の原理検証実験は 1972 年に既に我が国の Aoki, Kikuta らによって行われており、X 線ホログラフィは我が国オリジナルの技術である。X 線フーリエ変換ホログラフィでは、試料にコヒーレント X 線を照射し、試料からの物体波と参照光とを重ね合わせることによってホログラムを作り、CCD カメラにより記録する。この手法では位相情報はホログラムの中にエンコードされており、実験で得られたホログラムをフーリエ変換することにより、実空間の像を再構成することができる。X 線フーリエ変換ホログラフィの利点として、1. 光学系を用いないため試料周辺のワーキングディスタンスが大きく、空間の制約を受けないため低温、磁場中実験などが容易に行える、2. X 線回折顕微鏡と異なり、オーバーサンプリングの制約を受けないため試料周辺部を完全に遮蔽する必要がないなど自由度が大きい、3. 原理的には波長程度の高い空間分解能が得られる、4. 振動に強いこと（特別な除振が不要）、5. アライメントが簡便なのでサンプル交換が簡単であること、などがあげられる。

しかしながら、X 線分光ホログラフィの有用性が実証されたのはごく最近になってからのことであり、2004 年の Eisebitt らの研究を端緒としている [1]。彼らの実験では軟 X 線領域での X 線磁気円二色性を用いることによって、磁性体の磁区構造を明瞭に観察している。しかしなが

ら、第3世代放射光を用いても輝度が十分ではなく、1つの画像の取得に数10分かかるのが現状である。

一方、この手法では参照光のサイズが空間分解能を決定するため、より高い空間分解能を達成するためには新しい技術が必要とされている。このため我々はまず集束イオンビーム(FIB)を用いて作製可能な20 nmの参照光を用いて、20 nm空間分解能での顕微分光を目指す。さらに、その先は、X線フーリエ変換ホログラフィとオーバーサンプリング法を組み合わせることにより、波長程度の空間分解能、すなわち1 nm空間分解能でのイメージングを可能にするべく研究を展開する予定である。

その他、フーリエ変換X線ホログラフィを実用化し、幅広い研究者や産業界のユーザに利用してもらうことが可能になるようには、下記のような研究課題に取り組み、技術開発を行うことが重要であると考えている。

- ・フーリエ変換X線ホログラフィによる顕微分光イメージング手法の開発
- ・空間分解能1 nmの達成
- ・位相コントラスト顕微イメージング手法の開発
- ・生体試料を含むナノ材料試料を簡便に測定することができる試料ホルダの開発
- ・大気圧での測定が可能な実験装置の開発

フーリエ変換X線ホログラフィを用いたX線イメージング技術を実用化出来れば、現状でのX線イメージングにおける空間分解能の壁10 nmを凌駕し、空間分解能1 nmでの観察が可能になるため、ナノサイエンス、生命科学へのインパクトのみならず、産業界への貢献も大きいであろう。

また、近い将来に実現するであろうX線自由電子レーザー(XFEL)、エネルギー回収型リニアック(ERL)などの次世代放射光源、あるいはコヒーレント軟X線レーザーなどの短波長レーザー光源での研究へ向けてのR&Dを行うことにより、1ショットでのX線イメージング、単分子の分光イメージング、フェムト秒分解能でのダイナミクス観察などの研究へつながることを期待している。

文献

- [1] S. Eisebitt, J. Lüning, W. F. Schlotter, M. Lörger, O. Hellwig, W. Eberhardt and J. Stöhr, Nature 432, 885 (2004)

X線ホログラフィーで判る半導体材料における特異な局所構造

東北大学金属材料研究所 林 好一

1 はじめに

半導体、超伝導、触媒などの先端材料の開発には、原子レベルでの構造解析は必要である。電子顕微鏡や走査型プローブ顕微鏡などは、科学、工業の分野において広く浸透しており、原子を可視化できる技術として認識されている。一方、X線を用いる技術は、X線回折に代表されるよう、半世紀前から結晶構造の解明に利用されている。しかしながら、原子配列の決定は直接的ではない。仮定に基づく原子配列モデルを用いた理論計算から得られるプロフィールと、実験値とのフィッティングが必要となり、X線構造解析の十分な知識や経験が要求される。それ故、一義的に結晶構造決定を決定できる三次元原子イメージング技術が長く望まれてきた。蛍光X線ホログラフィーは、この要求に対する一つの解決法である。本法には、蛍光X線の干渉を利用するノーマル法と、入射X線が結晶内で形成する定在波を利用するインバース法が存在する。両者は、それぞれ光学的相反定理の関係にある。インバース法では、入射X線のエネルギーでホログラムを記録するために、放射光を用いる場合、様々な波長域で複数のホログラムを記録することができるため、クリアな原子像が得られる。このため、我々がやっているほとんどの蛍光X線ホログラフィーの実験は、インバース法によって行われている^{1,2)}。蛍光X線ホログラフィーの特徴は、特定元素周辺の原子の三次元座標が半径10Å程度まで決定可能なことであり、第一近接のみならず、第七、八近接の原子位置まで同定することが可能である。このため、ユニークな物質の構造情報を提供することができる。ここ、2-3年は半導体試料を中心として、本手法でなければ得られないいくつかの発見があった³⁾。まず、N型半導体であるSi:AsにおけるAs周辺の原子像は、従来常識とされてきた4配位構造とは大きく異なるものであった。また、希薄磁性半導体であるZnMnTeにおいては、その局所歪みを反映した特異な原子像が観測された。

2 Si:As

Si単結晶中にドーピングしたAsの周辺の局所構造に関する結果を紹介する。本試料は、典型的なN型半導体の一つであり、例えばKittelなどの固体物理教科書にも半導体の章では例示されているものである。このとき用いられる図では、Asは4つのSiと結合し、電子が一つ余っている状態が描かれている。即ち、ダイヤモンド構造をベースとした4配位構造を持つことが、これまでの常識であった。しかしながら、X線ホログラフィーで観測された(001)、(004)面の原子像(Fig.1)は、この常識を覆している。Asの周りがダイヤモンド構造を保っていれば、緑色の丸内に原子像が観測されるはずである。しかし、(001)面には格子位置に原子像が見えるが、(004)面には観測されない。その代わりに、赤丸で示す $\frac{1}{2}00$ の位置に明瞭に像が見える。一方、SiにドーピングしたGeの周りの原子像においては、(004)面においても緑色の丸内に明瞭に原子像が観測される。このことは、As

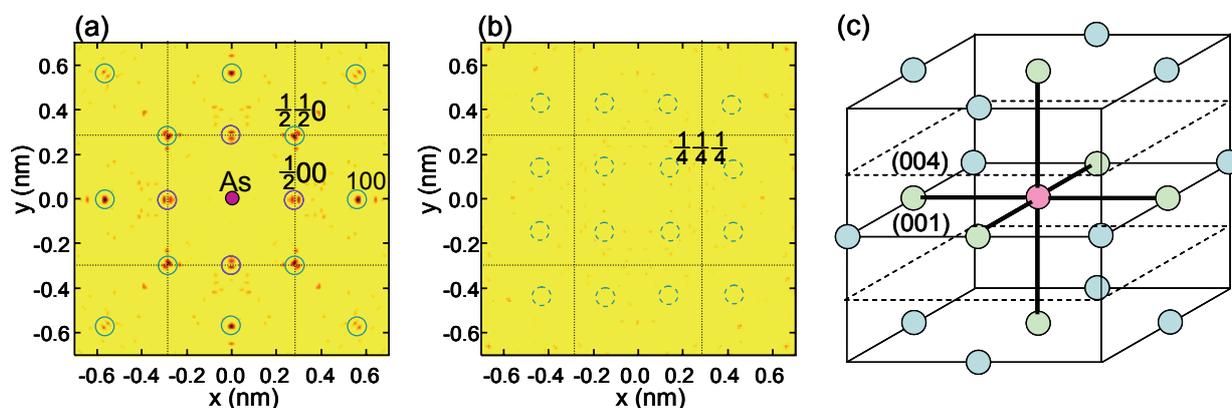


Fig.1 Asの周りのSiの原子像。(a) (001)面 (b) (004)面 (c) 原子配置モデル。赤色の丸は観測された第一近接の像であり、緑色の丸は4配位構造での予測位置。

が単純に Si に置換しているわけではなく、六配位構造をベースとした特異な局所構造を持っていることを示している。4)

3 ZnMnTe

$Zn_xMn_{1-x}Te$ は希薄磁性半導体として注目された材料の一つである。x の値によって格子定数が徐々に変化する Vegard 則に従うことが X 線回折によって分かっているが、EXAFS の結果からは、Zn-Te 及び Zn-Mn 間の結合距離が x の値によってもほぼ一定である、いわゆる Pauling 則に従うことが分かっている。一見、この矛盾した結論を X 線ホログラフィーに紐解くことを試みた 5)。Fig. 2 は、ZnTe と $Zn_{0.4}Mn_{0.6}Te$ のホログラムから得られた原子像である。ここで、ZnTe は標準試料として用いた。表示している面は、Te の存在する (004) 面である。Fig. 2 (b)、(c) の比較より、明らかに第一近接、第五近接の Te 原子の強度が弱いことが分かる。それ以遠の原子に関しては、むしろ強度が同程度になる傾向がある。強度が弱くなることは、原子位置の不確定さを反映していると考えられる。第一、第五、第十三近接 Te 原子は、平面的な Zn-Te-Zn(Mn)-Te-Zn(Mn)-Te 結合のジグザグ構造の一部であるが、ZnMnTe の第十三近接 Te 原子において、急激に Zn 原子との位置関係が回復するのは興味深い。一方、第三近接原子は比較的強度が強いことから、立体的な結合を介する第三近接原子では、比較的近い原子間距離においても位置関係が回復することが分かる。このような、原子像強度の比較から、局所格子歪みに関する定量的な情報が得られつつある。

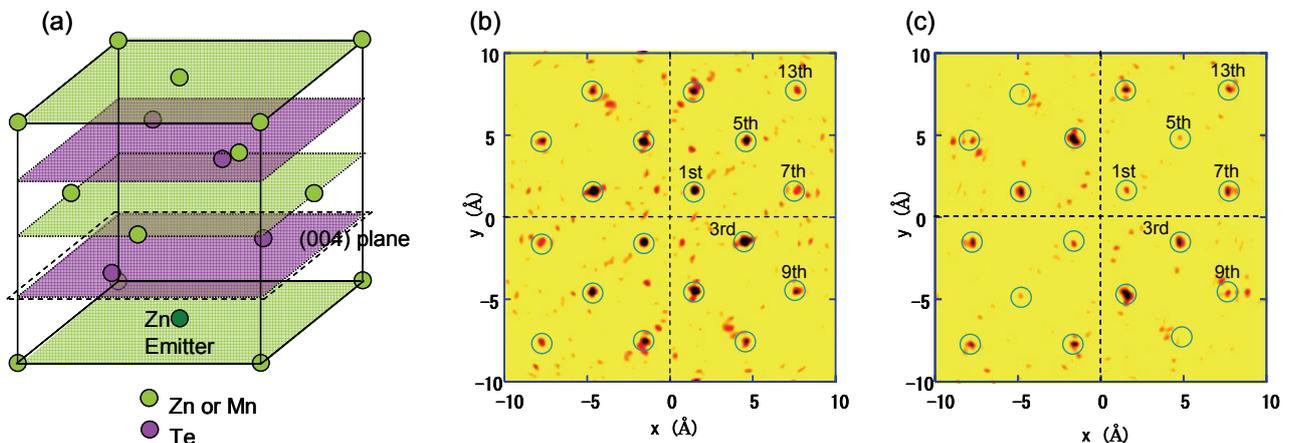


Fig. 2 ZnMnTe 及び ZnTe における Zn の周りの原子像。(a) 原子配列モデル。(b) ZnTe。(c) MnMnTe。(b) 及び(c) は(004)面を再生したもの。

4 まとめ

Si:As 及び ZnMnTe の原子像を紹介するとともに、本手法でなければ得られない特異な局所構造の存在を示した。これらの事例に関しては、現在も慎重に解析を続けている。我々の X 線ホログラフィーの研究は、ここ数年、実用材料を見据えた研究にシフトしてきているが、本手法の価値を大きく見出せるような試料に出会うことも少なくなってきた。今後も、基礎と応用の両輪で研究を進めていきたい。

参考文献

- 1) K. Hayashi, *Advances in Imaging and Electron Physics* **140** (2006) 119–185.
- 2) K. Hayashi, T. Hayashi, T. Shishido, E. Matsubara, H. Makino, T. Yao and T. Matsushita, *Phys. Rev. B* **76**, 014119 (2007).
- 3) S. Hosokawa, T. Ozaki, K. Hayashi, N. Happo, M. Fujiwara, K. Horii, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, *Appl. Phys. Lett.* **90** (2007) 1361913.
- 4) 林 好一、米永一郎、*までりあ* 第46巻 第12号 (2007) 829.
- 5) S. Hosokawa, N. Happo, K. Hayashi, *J. Mag. Mag. Mat.* **310** (2007) 2707–2709.

硬X線結像ホログラフィー顕微鏡

鈴木芳生、竹内晃久

JASRI/SPring-8

X線結像顕微鏡と波面分割干渉計の組み合わせで高分解能波面再生が可能になる[1]。この光学系は外村彰氏らによる電子線ホログラフィー顕微鏡 [2]と同じ光学系であり、磁界レンズをフレネルゾーンプレートや屈折レンズ等のX線結像光学素子に置き換え、電子線バイプリズムをX線屈折プリズム干渉計[3-5]あるいは全反射ミラー等の波面分割干渉計に置き換えたものとして理解できる。

X線プリズム（いわゆるフレネルのバイプリズム）も全反射ミラーX線干渉計（ロイドの鏡）も原理的には数十年前から報告されているものである。また、フレネルゾーンプレートやウォルターミラー等の結像光学素子に関しても50年以上前から考えられていたものである。しかしながら、これまでこのような高分解能X線位相計測（正しくは波面再構成）は実現されていなかった。以前はX線領域で十分な性能の結像光学素子が無く、高分解能結像顕微鏡の実現が困難であると言われていたが、近年超LSI技術を利用した精密加工により10nmオーダーの高空間分解能X線結像顕微鏡が実現されている。これが第一のブレークスルーである。もうひとつの鍵は高輝度X線光源（SPring-8等）と、波面を乱さずに輸送するビームライン技術である。これらにより、X線画像計測に十分なフラックスを持ち、かつほぼ100%可干渉な波面が顕微鏡の視野内で実現されるようになった[6]。具体的な数値としては、フラックス $\sim 10^{10}$ photons/s以上、空間可干渉領域 $100\mu\text{m}$ ～数 $100\mu\text{m}$ 、時間可干渉性は $\lambda/\Delta\lambda$ で1000以上、である。

図1に顕微鏡光学系の一例を示す。対物レンズにフレネルゾーンプレート（あるいは屈折レンズ）、波面分割干渉計に屈折プリズムを用いた場合である。被写体をほぼ平面波近い可干渉平行光で照明し、焦点面より下流においたプリズムで波面のおおよそ半分を偏向させ、これをホログラフィーの参照波とする。画像検出器を被写体に対する結像面に置くことにより、拡大結像された物体の波面に参照波が重畳され、物体を透過することで変調を受けた干渉縞として観測される。この変調された干渉縞はインターフェログラムあるいはホログラムと呼ばれる。これには波面の完全な情報が含まれており、光学的なホログラム再構成または計算機上ではフーリエ変換法により波面再生が可能である。本研究の光学系と同様なものがほぼ同時期に発表されており[7, 8]、本研究でも報告されているが、それらの手法と比べた場合の特長は対物レンズを選ばないという点と一次元の空間コヒーレンスだけで成り立つことである[9]。特に空間的に一方向のコヒーレンスだけで十分な為に、それに直交する方向の空間コヒーレンスを意図的に低下させる（ある

いは一方向だけで空間コヒーレントな光源を用いる) ことにより、スペックルノイズを抑制することが可能であり、これは普通のシンクロトロン放射のように水平垂直で光源エミッタンスが極端に差のある光源に対してはフラックスの利用効率の点でも都合が良い。

図2に測定したホログラムの例を示す。試料は分解能評価用に作製したテストパターンであり、SiN 薄膜上にタンタル0.5 μm の厚さで0.1 μm までの微細パターンが加工されている。図には試料も参照波も無い場合の視野 (blank image)、被写体のみで参照波を重ねていない場合 (いわゆる明視野像、bright-field image)、参照波のみを重ねさせた場合の干渉縞 (carrier fringe)、被写体透過波面に参照波を干渉させたホログラムをそれぞれ示してある。図3には縞走査法による位相回復の例を示す。これらの実験はいずれも SPring-8 BL20XU [10]で行った。対物レンズは最外線幅 100 nm のフレネルゾーンプレート[11]を用いており、実測したエッジパターンの画像から見積もられる空間分解能はおおよそ 200nm であり、平面波照明の場合の理論分解能 (λ/NA) とよく一致している。この位相計測法は定量的かつ一意の解が得られるため、計算機トモグラフィ (CT) の手法による三次元計測も可能である。

参考文献

1. Y. Suzuki and A. Takeuchi, Rev. Sci. Instrum. **76** (2005) 093702.
2. A. Tonomura, Rev. Mod. Phys. **50**, 639 (1987), and referred therein.
3. Y. Suzuki, Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) L1019.
4. Y. Suzuki, AIP Conf. Proc. **705** (2004) 724.
5. 鈴木芳生 日本放射光学会誌 **18** (2005) 75.
6. Y. Suzuki, Rev. Sci. Instrum. **75** (2004) 1026.
7. T. Koyama, et al., Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) L421.
- T. Koyama, et. Al., Jpn. J. Appl. Phys. **45** (2006) L1159.
8. N. Watanabe, et. al., Proc. of 8th Int. Conf. X-ray Microscopy, IPAP Conf. Series **7** (2006) 372.
9. Y. Suzuki and A. Takeuchi, AIP Conference Proceedings **879** (2007) 1305.
10. Y. Suzuki, et. al., AIP Conference Proceedings **705** (2004) 344..
11. H. Takano, Y. Suzuki and A. Takeuchi, Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2003) L132.

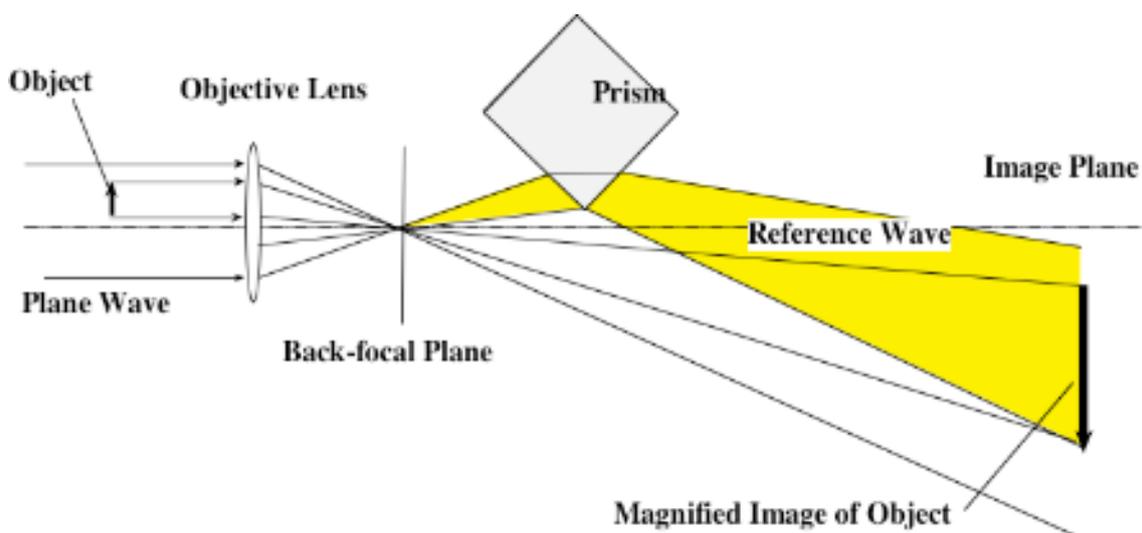


図1. 結像ホログラフィー顕微鏡の光学系概念図。図には示していないが、対物レンズとしてフレネルゾーンプレートを用いる場合は地面に垂直な方向の半円の開口を使うことにより必要な次数の回折波だけを用いるように空間フィルターで制限している。

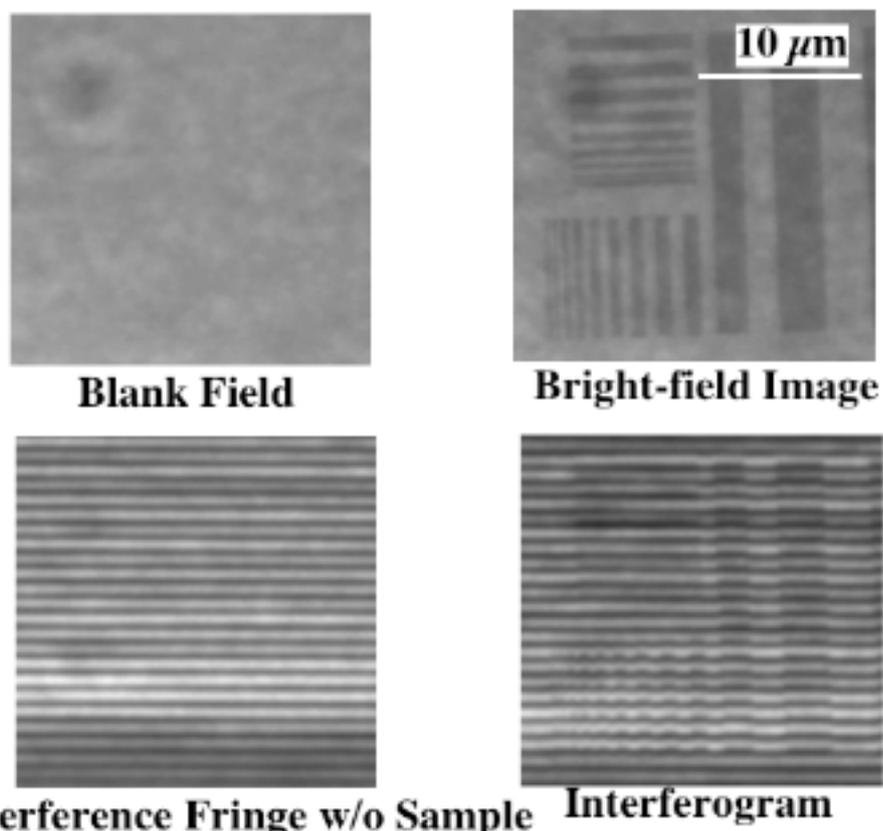


図2. ホログラム測定例。X線波長 $1.0\ \text{\AA}$ 。対物レンズにはフレネルゾーンプレート[10]を用いている。頂角 90 度のアクリル樹脂のプリズムに視射角 0.5 度で入射させ、偏向角は $0.2\ \text{mrad}$ 。

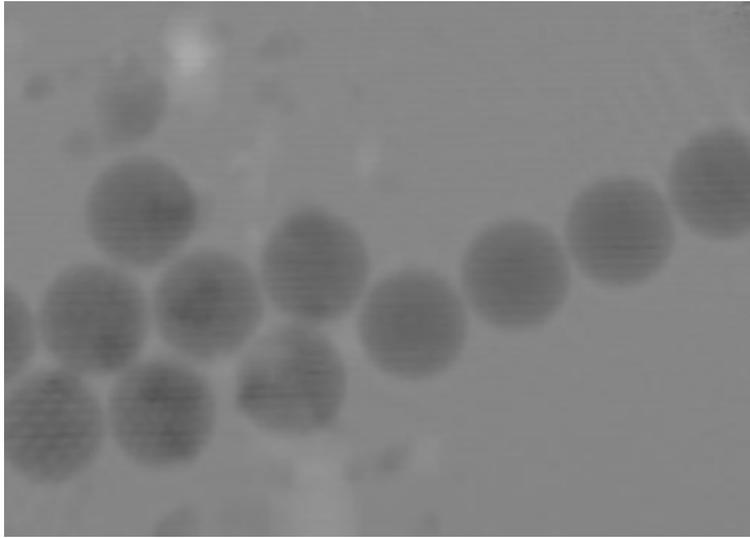


図3. 縞走査法による位相回復。試料は直径 $8\mu\text{m}$ のラテックス球。X線波長 1.0\AA 。干渉計は全反射ミラーによるロイド型波面分割。干渉縞走査は被写体直前に置いた位相板の回転による4ステップスキャン。

ゾーンプレート硬 X 線干涉顕微鏡による 3 次元位相トモグラフィー

筑波大学 数理物質科学研究科
電子・物理工学専攻 渡辺紀生

1. はじめに

X線顕微鏡で生物試料などの観察を行う場合、波長 2.3 nm から 4.4 nm の Water window が水を通して高いコントラストが得られる領域として開発が行われてきた。しかしこのような軟 X 線領域では、試料の厚さは 10 μm 程度に限られる。より大きな試料の観察を行おうとするとより透過力の大きいエネルギーの高い X 線を使う必要があるが、主に軽元素で構成される生物試料の場合吸収によるコントラストが非常に小さいという問題があった。このため、硬 X 線領域の顕微鏡開発では、位相差顕微鏡、微分干涉顕微鏡、干涉顕微鏡といった様々な位相コントラスト結像法が開発されてきた。この中で、干涉顕微鏡は試料による位相変化を正確に測定するには最も適したものであり、位相の絶対値を測定することが出来るため容易に位相トモグラフィーによる 3 次元観察に展開できる利点がある。ここでは、ゾーンプレートを 2 枚組み合わせで作成した干涉顕微鏡[1]とその 3 次元位相トモグラフィーへの応用について紹介する。

2. 硬 X 線干涉顕微鏡光学系

図 1 に光学系の原理を示す。同じスペックを持つゾーンプレートを 2 枚、焦点距離の 2 倍離して光軸上にセットし、ゾーンプレートの中心に対して対称な位置に 2 本の光束を入射させる。以前はダブルピンホールを用いて 2 本の光束に分けていたが、現在は視野を広くするためにワイヤーを用いて上下に分けている。下側の光束で試料を照明し、1 枚目ゾーンプレートで検出器面上に試料の像を作る。この結像では、1 枚目ゾーンプレートの 1 次光のうち 2 枚目ゾーンプレートを直進する 0 次光が像を形成することになる。上側の光束においてゾーンプレート 1 枚目の 0 次光が 2 枚目ゾーンプレートの -1 次光となったものは、試料を結像する光と同じ経路を取り、検出器面上で干涉する。上側の参照光の位相を変化させることによって、像の明暗をコントロールすることが可能となる。実際の光学系では、ゾーンプレートのその他の次数の組み合わせが像にかぶってこないように、図 1 に示すようなビームストップが必要である。また、X 線を 2 本の光束に分けるワイヤーは、ゾーンプレートの直径の 3 分の 1 の直径が必要となる。

実験は SPring-8 BL20XU で行った。この光学系では、ゾーンプレートに入射する 2 光束のうち、光軸に対して近い側同士、遠い側同士が干涉する。このため、空間コヒーレンスを向上させるためにフロントエンドスリットを $0.2 \times 0.2 \text{ mm}^2$ に制限して使用した。また分光器直後に縦方向に 50 μm のピンホールを挿入することで、そこから約 200 m 下流の光学系でほぼ視野全面にわたる干涉像を得ることができた。2 枚のゾーンプレートには直径 330 μm 、最外輪帯幅 50 nm、Ta パターンで厚さ 0.4 μm (NTT アドバンステクノロジー)のものを用いた。2 枚のゾーンプレートの光軸方向の距離は X 線エネルギー 8 keV に対応する 213 mm に固定し、像の干涉縞が消えるように分光器で X 線エネルギーを僅かに調整した。像は 6.6 m 下流の検出器 (P43 蛍光板 + CCD カメラ、蛍光面でのピクセルサイズ: 3 μm) 上に倍率 62 倍で結像した。参照波の位相は厚さ 70 μm の石英板を回転することで変化させた。この位相を $\pi/2$ ずつ変化させた 4 枚の画像を記録し、フ

リングスキャンによって試料の位相を計算した。それぞれの画像の記録には 20 s 程度を要した。

図 2 に Ta の厚さ $0.5\ \mu\text{m}$ Line & space パターンの位相像を示す。 $0.2\ \mu\text{m}$ Line & space パターンまで解像できている。しかしゾーンプレート自体の理論的分解能が $60\ \text{nm}$ であり、試料面に換算した検出器ピクセルサイズが $48\ \text{nm}$ なので、そこから期待される分解能 $80\ \text{nm}$ と比較すると悪い結果となった。

3. 3次元位相トモグラフィー

試料としてヒカゲノカズラ胞子（石松子）を用いて位相トモグラフィーのテストを行った。この試料の直径は約 $30\ \mu\text{m}$ であり、ピペットプレーにて先端部直径 $38\ \mu\text{m}$ に引き伸ばしたガラスキャピラリの先端部に固定して回転ステージに取り付けた。この位相像を図 3 (A) に示す。20 s 露光の 4 枚の像からの位相再構成像である。このような投影像を 2 度間隔で 90 投影記録し、Shepp-Logan フィルターを用いた Convolution Back-projection (CBP)法で再構成を行った。その結果の断面像を図 3 (B) に、一部の三次元表示像を図 3 (C) に示す。再構成像から、サブミクロンの分解能は十分に得られていると考えられる。

ここで用いた検出器では、画面全体のサイズが $64\ \mu\text{m}$ であり、顕微鏡の視野の一部分を観察している状態である。分解能は少し悪化するが、よりピクセルサイズの大きな検出器を使うことで、現状では $100\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ 程度の視野が得られるようになっており、今後より複雑な生物試料へ適用していく計画である。

なお、本研究の成果は、青木貞雄（筑波大）、星野真人（筑波大）、山本一行（筑波大）、竹内晃久（SPring-8）、鈴木芳生（SPring-8）との共同研究による。

参考文献

[1] N. Watanabe, M. Hoshino, M. Sato, Y. Takeda, T. Namiki, S. Aoki, A. Takeuchi, and Y. Suzuki, Proc. 8th Int. Conf. X-ray Microscopy, (IPAP Conf. Series 7, 2006), pp.372-374.

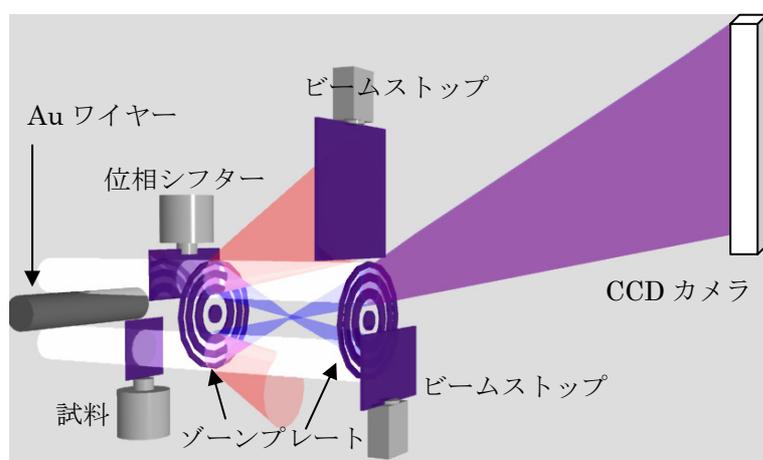


図 1 2枚のゾーンプレートを用いた干渉顕微鏡光学系

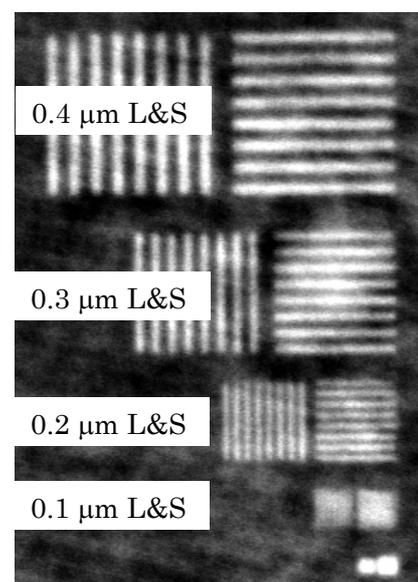


図 2 Ta パターンの位相像

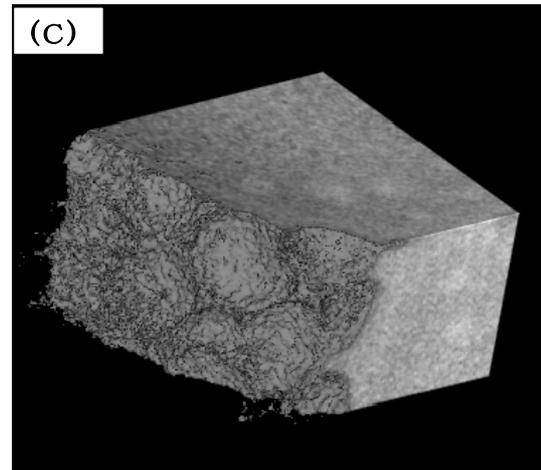
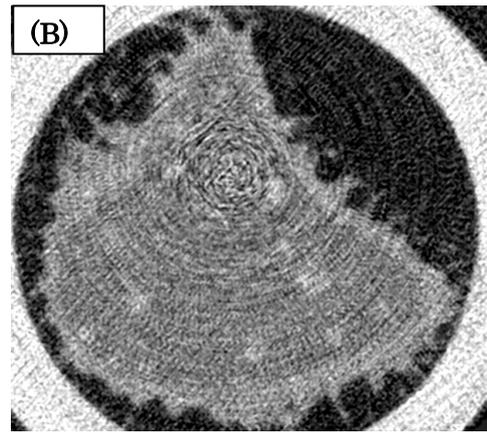
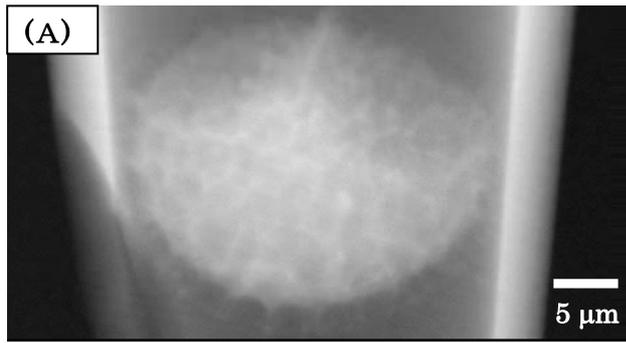


図3 ヒカゲノカズラ胞子（石松子）の位相像、及び位相トモグラフィ再構成像。(A)位相像、(B)断面の位相再構成像、(C)3次元再構成位相像。

コヒーレントX線回折顕微法の生物応用

西野吉則
理化学研究所播磨研究所

コヒーレントX線回折顕微法は、これまで実現不可能であった、ナノメートル・原子の空間分解能を原理的に達成可能とするレンズを必要としない斬新なX線顕微法であり、世界的な注目を集めている [1-3]。1999年に行われた世界初のデモンストレーション実験以来、実験装置やデータ解析法の改良が進められ、現在では、応用研究や将来のX線自由電子レーザー利用に向けた研究へと、世界的な研究の重点が移りつつある。本稿ではコヒーレントX線回折顕微法の生物学への応用について概説する。

細胞内小器官の高空間分解能での構造観察では、クライオ電顕が現在最も有力な手法であるが、厚い細胞内小器官や細胞全体の可視化には、透過能の優れたX線顕微鏡が潜在的優位性を有している [4]。X線に対してこれらミクロンサイズの生物試料は、吸収によるコントラストが得られないほぼ位相物体であるが、コヒーレントX線回折顕微法は回折現象を利用することにより、試料によるX線波の位相シフトを高感度で検知することができる。

コヒーレントX線回折顕微法の生物応用は、重要性が高く多くの関心を集めているが、生物試料は材料科学系の試料に比べ、一般に、散乱能が小さくかつ放射線損傷を受けやすいため、測定がより困難で、観測例は世界的にまだ限られている。世界初の生物応用は、SPring-8 BL29XULで我々が行った大腸菌の硬X線による観察である [5]。図1に、大腸菌試料のX線回折強度パターンと再構成された二次元投影像を示す。二次元投影像観察では、その後、Advanced Light Sourceで軟X線を用いた酵母菌観察 [6] や、SPring-8で魚の骨の観察 [7] などが行われている。

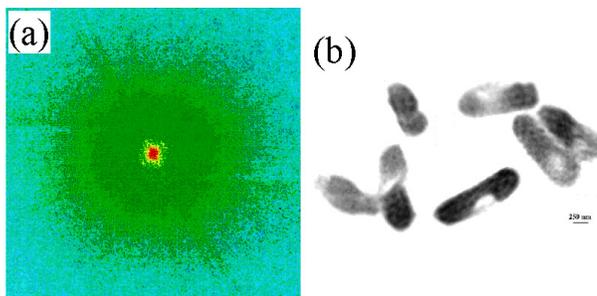


図1 大腸菌試料の観察 [5]。(a)はX線回折強度パターン、(b)は再構成された二次元投影像を示す。入射X線の波長は 2.13 \AA 。試料に用いた大腸菌の典型的なサイズは、 $0.5 \text{ \mu m} \times 2 \text{ \mu m}$ 。マンガンで染色し、試料像のコントラストを増した。X線回折強度データが得られなかった中心部の 70×70 ピクセルのデータを補うため、軟X線顕微鏡による試料像を補足的に用いた。再構成像の空間分解能はおよそ 30 nm 。再構成像では、マンガンで標識されたタンパク質の欠如領域が観測された。

最近になって、我々は、世界初の硬X線による細胞内小器官の三次元観察に成功した [8]。試料には、無染色ヒト染色体を用いた。コヒーレント回折強度データのみから、ヒト染色体の三次元像が再構成され、高い電子密度をもつ内部構造が観察された。これにより、細胞内小器官に対する硬X線CT撮影が現実のものとなった。コヒーレントX線回折顕微鏡は三次元の電子密度マップを与えるため、X線結晶構造解析による原子分解能構造と直接対応させることができる点も重要である。

ヒト染色体の測定では試料は空気乾燥されていたが、内部構造をより自然な状態に保つためには、水和状態での観察が望ましい。さらに、水和試料を急速凍結することにより、試料の放射線損傷を軽減させることができる。凍結水和試料の測定においては、試料構造を維持するため、調整段階から観察に至るまで、試料をガラス相転移温度 -135°C 以下に保つ必要がある。我々は凍結水和試料の測定に向けて、試料の真空チャンバ中への低温搬送装置を製作中で、図2に示す我々が開発したコヒーレントX線回折顕微鏡装置と組み合わせて今後使用する予定である。

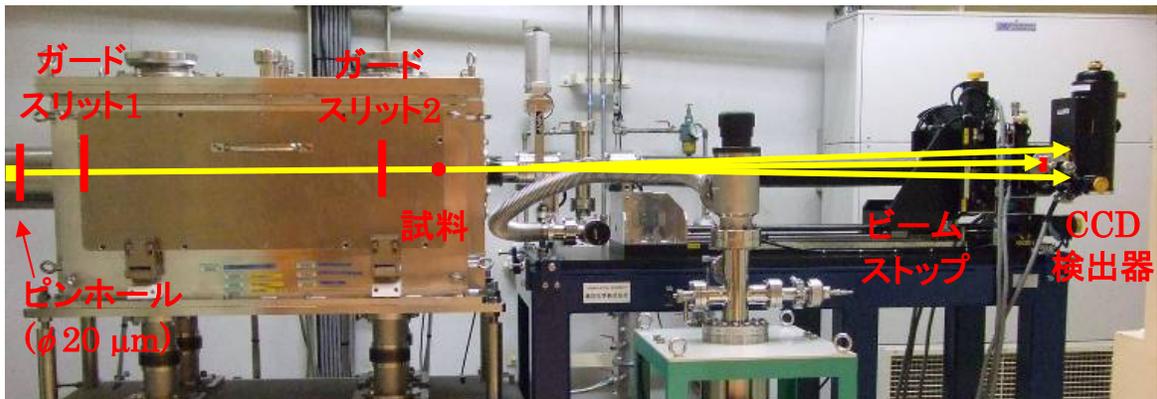


図2 SPring-8 BL29XUL 第一実験ハッチに設置されたコヒーレントX線回折顕微鏡装置。試料からの前方散乱小角領域のコヒーレントX線回折パターンを、CCD検出器で測定する。空気散乱によるノイズを排除するため、測定は真空中で行われる。本装置では、試料と検出器間の距離を簡便に変えることができ、これにより、様々な大きさの試料や、様々な大きさの試料の測定に対応できる。

現在、日本、アメリカ、欧州で、次世代のX線源であるX線自由電子レーザーの計画が進められている。X線自由電子レーザーは、空間的にほぼ完全にコヒーレントな、大ピーク強度、超短パルスX線であり、これを利用することによって、コヒーレント回折顕微鏡の飛躍的な展開が期待される。例えば、生体高分子等を結晶化を要さず、同じ構造をもった試料を次々とX線自由電子レーザーに照射することにより、三次元構造解析を行うというシナリオが議論されている。X線自由電子レーザーの超短パルス性能により、試料構造が破壊される前にコヒーレントX線回折データを取得する可能性が開け、従来の限界を超えた高空間分解能が達成できると期待されている [9]。X線自由電子レーザーを利用した

測定には、様々な面で技術的チャレンジを伴うため、今後も着実に技術開発を進めていく必要がある。

本研究は科研費（19310084）およびX線自由電子レーザー利用推進課題の助成を受けたものである。

参考文献

- [1] 西野吉則、石川哲也, 放射光 **19**, 3 (2006).
- [2] 西野吉則、石川哲也, まてりあ **45**, 99 (2006).
- [3] 西野吉則、高橋幸生、石川哲也, 顕微鏡, in preparation (2008).
- [4] R. Henderson, *Q. Rev. Biophys.* **28**, 171 (1995).
- [5] J. Miao, K.O. Hodgson, T. Ishikawa, C.A. Larabell, M.A. LeGros and Y. Nishino, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **100**, 110 (2003).
- [6] D. Shapiro *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **102**, 15343 (2005).
- [7] H. Jiang, *Phys. Rev. Lett.*, in press (2008).
- [8] Y. Nishino, Y. Takahashi, N. Imamoto, T. Ishikawa, and K. Maeshima, submitted (2008).
- [9] R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert and J. Hajdu, *Nature* **406**, 752 (2000).

硬 X 線 Sub-10nm ビーム形成のための集光波位相計測

山内和人 大阪大学大学院工学研究科

1. はじめに

SPring-8 に代表される第 3 世代放射光 X 線源が実用に供され、また、第 4 世代放射光 X 線源といわれる X 線自由電子レーザーの実現が視野に入った今日、高輝度 X 線光源を利用したナノスケール分析への期待が急速に高まっている。このために必要なナノスビームの形成には様々な方法があるが、大開口、高集光効率、長焦点距離（長ワーキングディスタンス）を特徴とする、2 枚の全反射ミラーを用いた Kirkpatrick-Baez (KB) 光学系が有効である。我々は、任意形状の表面に対して原子レベルの平滑性を得るナノメートルレベルの表面創製プロセスを開発して、長さ 100mm のミラー全域において、形状精度 0.1nm (RMS) を有する硬 X 線集光ミラーを試作し、15keV の硬 X 線を Sub-50nm、Sub-30nm に集光することに成功した¹⁾⁻⁴⁾。本研究は、これまでの研究成果をもとに、可能な限り高い精度のミラーを作製するとともに、ミラーによって集光されたビームの強度プロファイルを用い、位相回復によってミラー上での波面誤差を知る「At-wavelength 波面計測」と、これに基づく「ミラー上流での波面補正」など、従来にない概念を提案し、これらの手法を確立することによって、「世界最小の Sub-10nm 硬 X 線ナノビーム」を波動光学的な回折限界において達成することを目的としている（図 1 参照）。そして、電子顕微鏡に迫るナノメートルレベルの分解能で、生体組織を始め、様々な物質を分子スケールで分析可能な「Sub-10nm 分解能硬 X 線顕微鏡」の実現を目指している。

ビームウエストでの X 線干渉図形からミラー上での反射位相誤差を計測し、その場補正により Sub-10nm 集光を達成する。

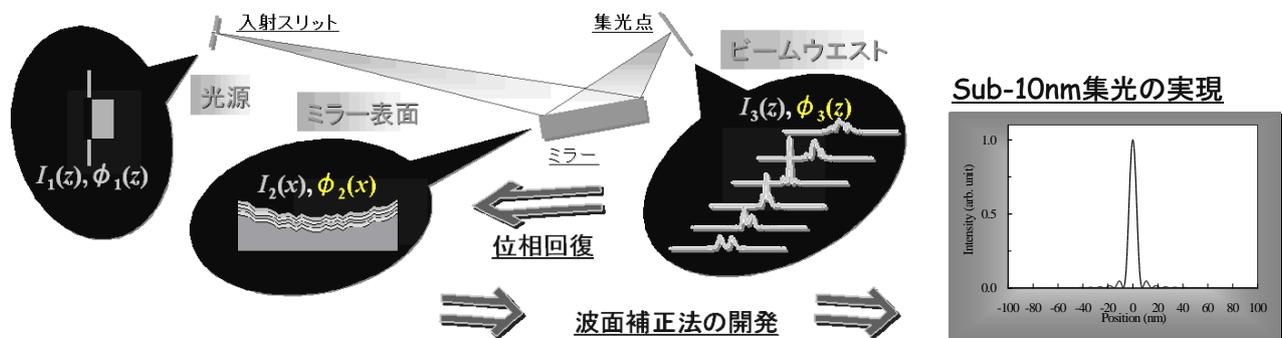


図 1 硬 X 線 Sub-10nm ビーム形成のための研究戦略

2. 集光ミラーでの反射位相誤差の At-wavelength 計測のこころみ

目標達成のため、現在、強度プロファイルからミラー上での反射位相誤差を得るための独自の位相回復アルゴリズムと、位相回復における強度データとなる、集光ビーム強度プロファイルの高精度測定法の開発を進めつつある。極度に湾曲した Sub-10nm 集光用に設計されたミラーであっても、我々のこれまでの実績から、オフライン計測に基づくミラー製作において、反射位相誤差に換算して $\lambda/2 \sim \lambda$ 程度の精度を得ることができる。この場合、X 線の波長が極めて短いことを考慮すれば、集光点を中心に収束・発散する X 線波面の理想球面からのずれを、集光点に対する対称位置において等しいと考えることができる。この考えのもとに独自の位相回復アルゴリズムを開発し、本アルゴリズムが、ビームプロファイルの計測誤差に対して十分な許容度を有することを確認した。一方、ビームプロファイル計測にお

いては、様々なスキャン法の中から、スキャナ先端エッジによる暗部へのフレネル回折を利用する方法を検討した⁵⁾。スキャナ材料や厚みなど、種々の観点からスキャナの構造を最適化し、X線入射方向の厚みが $2.5\mu\text{m}$ で、先端部の平滑度が 0.2nm (RMS)の白金製ナイフエッジを作製した。そして、回折限界における集光径が 30nm に設計されたミラーを用い、SPring-8のBL29XULにおいて、本計測法の有効性を実証するためのデモンストレーション実験を行った。回復された位相誤差をミラー形状誤差に換算し、オフラインで計測した形状誤差プロファイルとの比較を行った結果が図2である。オフライン計測とAt-wavelength計測の一致度は、位相誤差で $\lambda/7$ 以下であり、回折限界近傍での集光状態の評価を行い得る精度があることを確認した。また、この結果をもとにミラー形状を修正した結果、サテライト領域のサブピークの強度を低減することにも成功し、計測の「確からしさ」を位相誤差 $\lambda/7$ で実証した。現在、At-wavelength計測を用いた「その場」位相補正システムの構築に必要なアクティブミラーによる位相補正装置の開発を進めている。

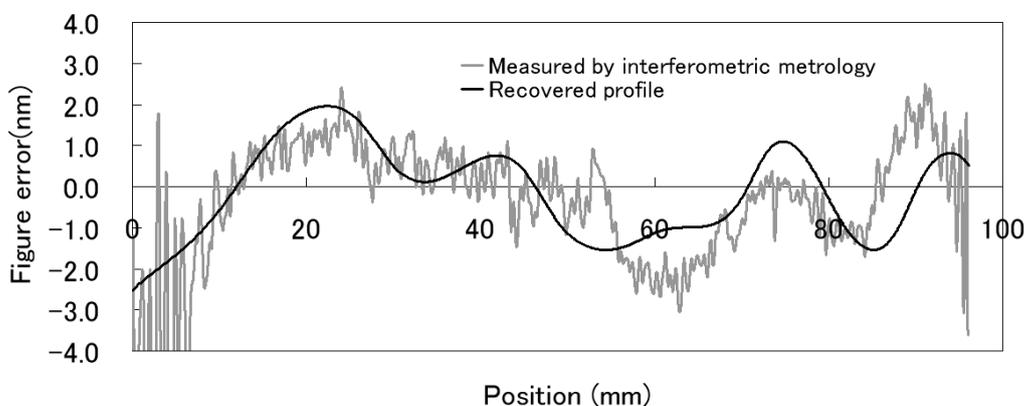


図2 At-wavelength計測とオフライン計測によって求めたミラー形状誤差の比較

謝辞

本研究は文部科学省科研費特別推進研究「硬 X 線 Sub-10nm ビーム形成と顕微鏡システムの構築」および 21 世紀 COE プログラム「原子論的生産技術の創出拠点」の助成の下で行われた。また SPring-8 BL29XU の利用は理化学研究所の協力のもとに行われた。また、本研究は、大阪大学の三村秀和、松山智至、湯本博勝、佐野泰久、SPring-8/RIKEN の西野吉則、玉作賢治、矢橋牧名、石川哲也等との共同研究で行われた。

参考文献

- 1) S. Matsuyama et al., Rev. Sci. Instrum. **77**, 103102 (2006).
- 2) H. Mimura et al., Appl. Phys. Lett. **90**, 051903 (2007).
- 3) H. Mimura et al., Phys. Rev. Lett. submitted.
- 4) H. Yumoto et al., Rev. Sci. Instrum. **77**, 063712 (2006).
- 5) Y. Suzuki et al., Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 44, No. 4A (2005)

位相コントラストX線イメージング法による 南極氷コア中のエアハイドレートの可視化と定量解析の試み

(株)日立製作所基礎研究所 米山 明男

(独)産業技術総合研究所計測フロンティア研究部門 竹谷 敏

1. はじめに

位相コントラストX線イメージング法は、X線がサンプルを透過する際に生じた位相の変化（位相シフト）を像のコントラストとする方法である。硬X線領域において、位相シフトを与える散乱断面積は強度変化を与える断面積に比べて軽元素に対して1000倍程度大きいため、従来の吸収コントラスト型のイメージング法では観察が難しかった生体軟部組織など主に軽元素で構成されたサンプルでも高い感度で観察することができる[1]。

日立ではX線干渉計を用いて位相シフトを検出する方法（X線干渉法）に着目し、単結晶ブロックで構成されたX線干渉計を利用したイメージングシステムの開発と、バイオメディカルイメージングへの適用を進めてきた。これまでに、2個の結晶ブロックで構成された干渉計（結晶分離型X線干渉計）を採用して観察視野の拡大と *in vivo* 生体観察への対応を行うと共に、X線の高エネルギー化による空間分解能の向上と密度ダイナミックレンジの拡大などを行い、現在、最大観察視野 60×40 mm、密度分解能 1 mg/cm³ のイメージングシステムが構築できている[2-4]。そして、本システムを用いて、ホルマリン固定した各種生体軟部組織の二・三次元観察[2, 3]、ヌードマウス表在癌の *in vivo* 観察と抗ガン剤投与効果の解析[5]、アルツハイマー病モデルマウス脳内に蓄積されたβアミロイドプラークの可視可と定量解析[6]などに成功している。

本発表では、材料解析（マテリアルイメージング）への適用の一環として、上記システムと新たに開発した低温サンプルチャンバーを用いて、南極の氷コアに含まれるエアハイドレートを三次元観察した結果について紹介する[7, 8]。

2. 南極氷コアとエアハイドレート

南極や北極域において、雪は溶けずにそのまま堆積するため、圧密により雪は氷へと次第に変化していく。このとき、雪の中に含まれていた空気は、気泡として氷に取り込まれることになる。その後、数千年から1万年を経過して氷の深度が地下500から1000mに達すると、気泡内部の圧力により、空気と氷が高压低温下で反応して、新たにエアハイドレートと呼ばれるクラスレートハイドレート（包接水和物）を形成する（図1）。このため、エアハイドレートは古期大気のタイムカプセルとなっており、その組成や分布等を分析することによって、古期から現在に至る地球環境変動の解明に新たな指標を与えるものとして注目されている[9]。

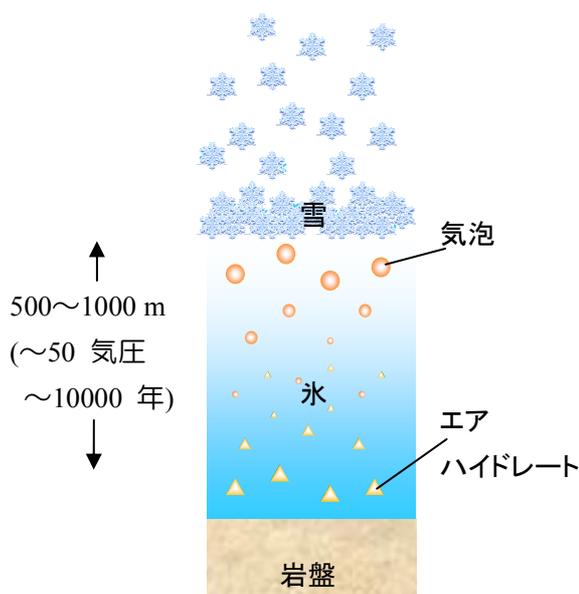


図1 極地の断面模式図。エアハイドレートは水の深さが500mになると形成される

なお、クラスレートハイドレートとは水分子が作る籠状の構造体中にガス分子を取り込んだ氷状結晶の総称のことで、一般には空気を取り込んだクラスレートハイドレートはエアハイドレート、メタン分子を取り込んだハイドレートはメタンハイドレートと呼ばれている。

3. イメージングシステムと低温サンプルチャンバー

本観察に使用したイメージングシステムを図2に示す。本システムは、非対称結晶ユニット、結晶分離型X線干渉計、イメージング用画像検出器、位相安定化用画像フィードバックユニット、サンプル及び位相シフタ用ステージユニット、及び新たに開発した低温サンプルチャンバーで主に構成されている。本システムに入射したX線は、非対称結晶によって横方向に数倍拡大された後にX線干渉計に入射する。X線干渉計では2本の干渉X線ビームが形成され、そのうち一方をイメージング用画像検出器（画素サイズ18 μm 、画素数2000 \times 2000、フレームレート0.3 fps）で、他方を画像フィードバックユニットの画像検出器で検出している。観察視野はX線のエネルギー35 keVにおいて横25 mm、縦30 mmである。また、高速三次元観察（測定時間40分）における密度分解能は約2 mg/cm^3 、空間分解能は50 μm 程度である。

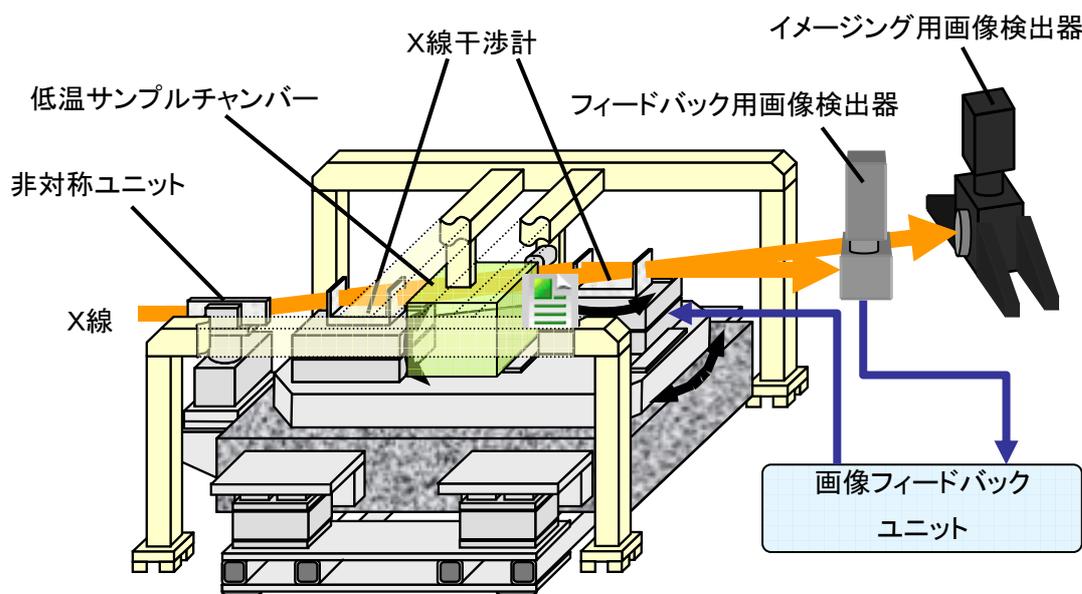


図2 本測定に使用したイメージングシステムの模式図

低温サンプルチャンバーの詳細を図3に示す。本サンプルチャンバーは、スタイロフォーム製の外箱、真鍮製の冷却容器、液体容器、及び温度調整ユニットから構成されている。チャンバー内の設定可能な温度範囲は-60 \sim 0 $^{\circ}\text{C}$ である。CTにおけるサンプルの回転軸は、サンプルの入れ替えが容易に行えると同時に、液体容器の構造を簡略化できるように、表在癌の *in vivo* 観察 [5]と同様に垂直軸に設定してある。冷却容器はX線が透過でき、且つ液体容器を安定に設置できるように凹型となっている。容器内部は空洞でドライアイスや液体窒素等の冷媒を封入することができ、機械的な振動の原因となる外部冷却器を用いることなく数時間にわたりチャンバー内部を低温に保持することができる。

X線干渉法において、サンプル内部と外部の密度差が大きく異なると、サンプル境界で位相シフト量が急激に変化し、解像できない細かい干渉縞が発生する。このため、正確に位相シフト量を検出できなくなってしまう。この問題を避けるために本システムでは、氷（密度 0.917 g/cm^3 ）とほぼ同じ密度の酢酸メチル（ $\text{C}_3\text{H}_6\text{O}_2$ 、密度 0.9283 g/cm^3 、凝固点 $-98 \text{ }^\circ\text{C}$ ）をバッファ液とし、このバッファ液で満たした液体容器中に氷を浸して測定を行った。

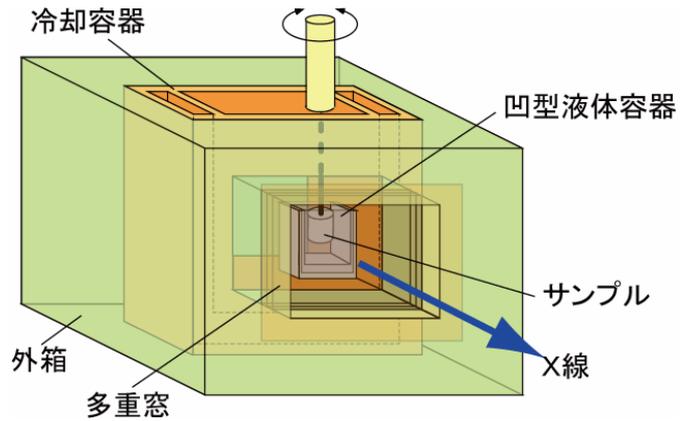


図3 低温サンプルチャンバーの詳細図

4. エアハイドレートの可視化と定量解析結果

上記のシステムを使用して、南極の「ドームふじ」で採掘された氷コアの三次元観察を行った。X線のエネルギーは多重窓の吸収を避けるために 35 keV とし、位相シフトの検出には走査数3の縞走査法（参照波の位相を走査し、異なる位相差で取得した複数の像から位相シフトを算出する方法）を用いた。また、干渉像の露光時間は3秒、CTのプロジェクション数は160（角度ステップ 1.125 度 ）とした。全体の測定に要した時間は40分である。尚、測定に際してCT再構成時に発生するアーチファクト（偽像）を低減するために、氷コアは直径 $6\sim 7 \text{ mm}$ 、高さ 10 mm 程度の円柱状に加工した。バッファ液の温度は、測定開始時 $-41 \text{ }^\circ\text{C}$ 、終了時 $-39 \text{ }^\circ\text{C}$ であった。

図4に深さ 1775.8 m （間氷期、13万年前）の氷コアを測定した結果を示す。ここでは、得られた各断面像を用いてボリュームレンダリング処理し、三次元で表示してある。また、氷と密度の異なる領域をより鮮明に描出するために、氷に相当する密度を透明に設定してある。この結果から、濃い青色の小さな塊（氷に比べて僅かに高密度）がコア内部全体に分布していることがわかる。氷との相対密度[10]や分布状態、及びサイズ等からこの小さな塊がエアハイドレートであると考えられる。

次に、可視化できている個々のエアハイドレート（青い塊）について、その密度やサイズ等の定量的な解析を行った。その結果、エアハイドレートの平均密度は氷より

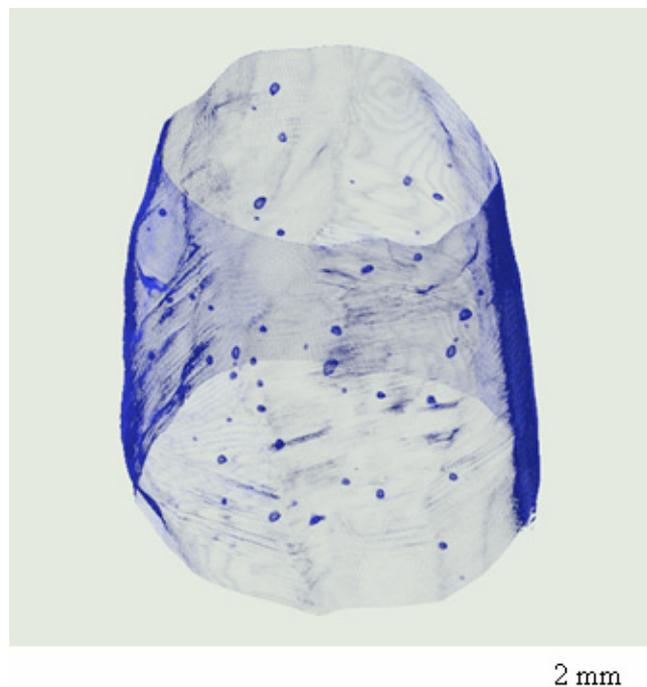


図4 深さ 1775.8 m （間氷期、13万年前）の氷コアの3次元ボリュームレンダリング像。青い小さな塊がエアハイドレート。

14 mg/cm³ 大きな 937 mg/cm³ であること、また氷コアに対するエアハイドレートの平均的な体積比率は約 0.06% であることがわかった。

5. まとめ

X線干渉計を用いた位相コントラスト X 線イメージングシステムと、新たに開発した低温サンプルチャンバーを用いて、南極の氷コアに含まれるエアハイドレートの三次元可視化に初めて成功した。定量解析により、エアハイドレートの平均密度は 937 mg/cm³ で、体積比率は約 0.06% であることがわかった。今後は、深さ方向に連続的に氷コアを測定し、過去数 10 万年に渡る地球古期環境変動の解明に新たな一指標を提供することを目指す。

謝辞

南極氷コアの測定に関して、本堂武夫 教授、奥山純一博士（北海道大学）、本田一匡博士（産業技術総合研究所）にご協力頂きました。放射光を用いた実験に関して、兵藤一行博士（PF）、武田徹博士（筑波大）、平井康晴博士（佐賀LS）にご協力頂きました。この研究に用いた氷コア試料は、南極地域観測隊が南極ドームふじにて採取したものの一部である。また、本研究の一部は、文部科学省科学技術振興調整費を用いて実施した。放射光を用いた測定はPFのG型課題「低温環境下における水分子で構成される結晶構造の3次元分布可視化技術の開発」（課題番号2005G294）のもとで実施した。

参考文献

- [1] A. Momose and J. Fukuda, *Med. Phys.* 22, 375 (1995).
- [2] A. Yoneyama, T. Takeda, Y. Tsuchiya, J. Wu, T. T. Lwin, A. Koizumi, K. Hyodo, and Y. Itai, *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Research A* 523, 217 (2004).
- [3] A. Yoneyama, T. Takeda, Y. Tsuchiya, J. Wu, T. T. Lwin, and K. Hyodo, *AIP Conference Proceedings* 705, 1299 (2004).
- [4] A. Yoneyama, T. Takeda, Y. Tsuchiya, J. Wu, T. T. Lwin, K. Hyodo, and Y. Hirai, *J. Synchrotron Rad.* 12, 534 (2005).
- [5] A. Yoneyama, N. Amino, M. Mori, M. Kudoh, T. Takeda, K. Hyodo, and Y. Hirai, *Jpn. J. Appl. Phys.* 45, 1864 (2006).
- [6] K. Noda-Saita, A. Yoneyama, Y. Shitaka, Y. Hirai, K. Terai, J. Wu, T. Takeda, K. Hyodo, N. Osakabe, T. Yamaguchi, and M. Okada, *Neuroscience* 138, 1205 (2006).
- [7] S. Takeya, K. Honda, A. Yoneyama, Y. Hirai, J. Okuyama, T. Hondoh, K. Hyodo T. Takeda, *Rev. Sci. Instrum.* 77, 053705 (2006).
- [8] 米山明男、竹谷敏、本田一匡、本堂武夫、奥山純一、武田徹、兵藤一行、平井康晴：第 20 回放射光学会(2007)
- [9] 本堂武夫：アロマティックス 51,155 (1999)、他
- [10] S. Takeya, H. Nagaya, T. Matsuyama, T. Hondoh, V. Ya. Lipenkov, *J. Phys. Chem. B* 104, 668, (2000).

Atherosclerotic Plaque Imaging using Phase-contrast X-ray Computed Tomography

Masakazu Shinohara, Tomoya Yamashita, Hideto Tawa
Masafumi Takeda, Naoto Sasaki, Tomofumi Takaya
Ryuji Toh, Akihisa Takeuchi[†], Takuji Ohigashi[†]
Kunio Shinohara[†], Seinosuke Kawashima, Mitsuhiro Yokoyama
Ken-ichi Hirata, Atsushi Momose*

Division of Cardiovascular Medicine, Department of Internal Medicine, Kobe University Graduate School of Medicine

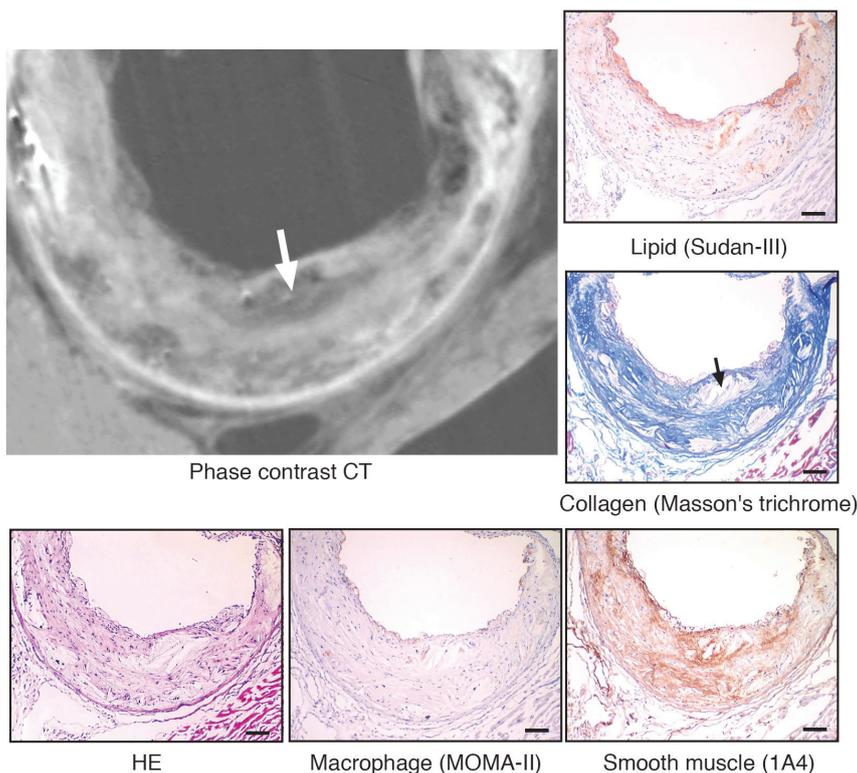
[†]Japan Synchrotron Radiation Research Institute

*Department of Advanced Materials Science, Graduate School of Frontier Science, The University of Tokyo

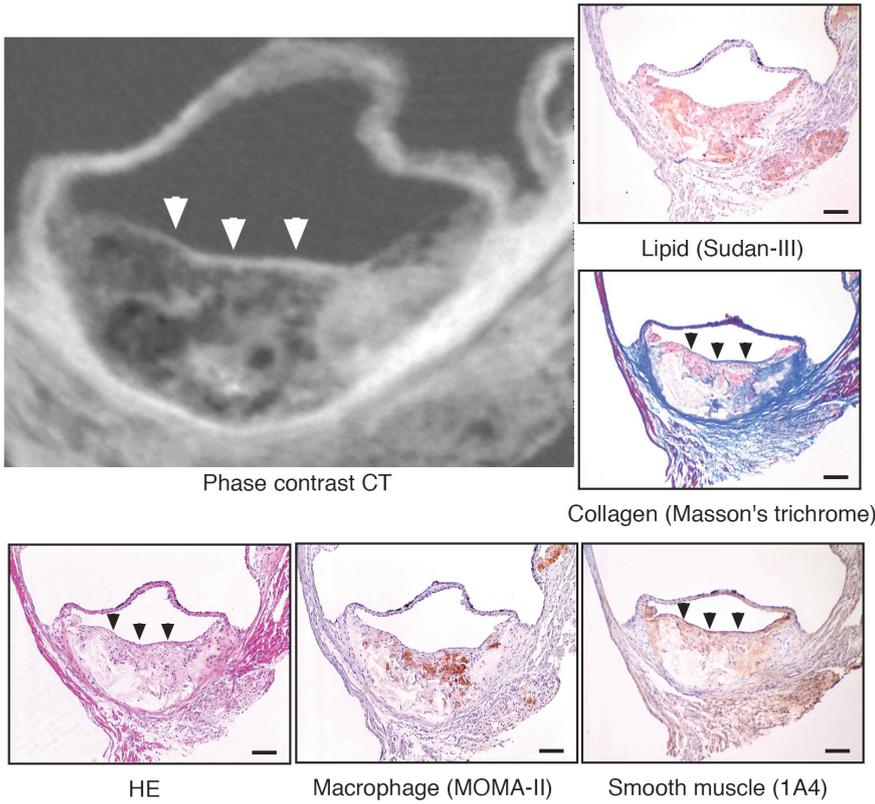
Objective: Reliable non-invasive imaging modalities to characterize plaque components are clinically desirable for detecting unstable coronary plaques, which cause acute coronary syndrome. Although recent clinical developments in computed tomography (CT) have enabled the visualization of luminal narrowing and calcified plaques in coronary arteries, the identification of non-calcified plaque components remains difficult. Phase-contrast X-ray CT imaging has great potentials to reveal the structures inside biological soft tissues because its sensitivity to light elements is almost 1000 times greater than that of absorption-contrast X-ray imaging. Moreover, a specific mass density of tissue can be estimated using phase-contrast X-ray CT.

Methods and Results: *Ex vivo* phase-contrast X-ray CT was performed using a synchrotron radiation source (Spring-8, Japan) to investigate atherosclerotic plaque components of apolipoprotein-E deficient mice. Samples were also histologically analyzed. Phase-contrast X-ray CT at a spatial resolution of 10-20 μm revealed atherosclerotic plaque components easily, and thin fibrous caps were detected. The specific mass densities of these plaque components were quantitatively estimated. The mass density of lipid area was significantly lower (1.011 ± 0.001766 g/ml) than that of smooth muscle area or collagen area (1.057 ± 0.001407 g/ml and 1.080 ± 0.001794 g/ml, respectively).

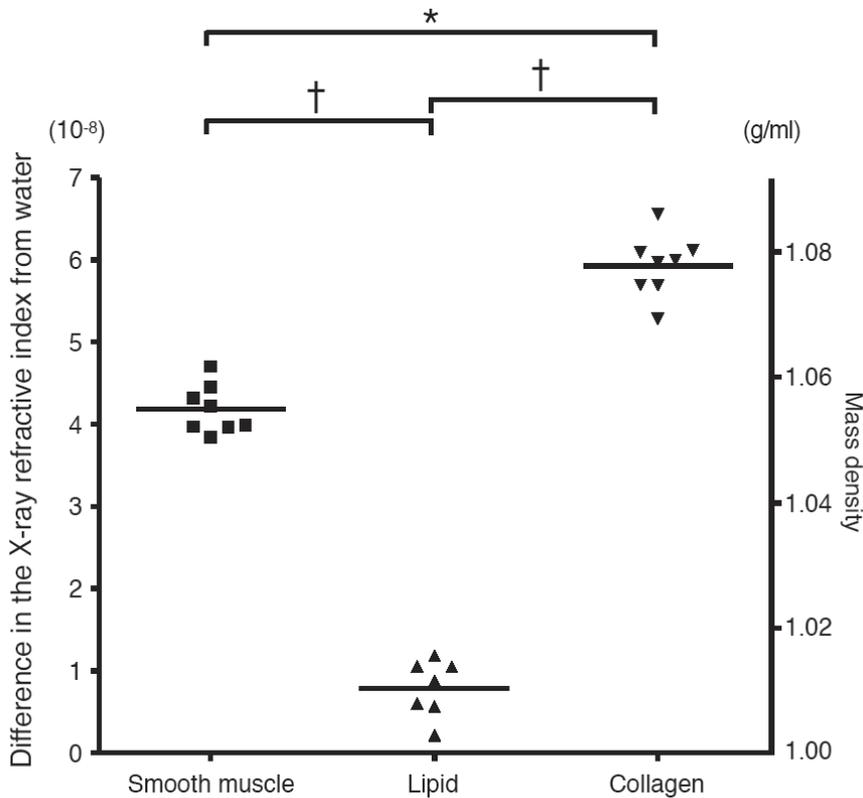
Conclusions: Phase-contrast X-ray CT can estimate the tissue mass density of atherosclerotic plaques and detect lipid-rich areas. It can be a promising non-invasive technique for the investigation of plaque components and detection of unstable coronary plaques.



A representative atherosclerotic lesion in the aortic sinus of the ApoE-KO mouse (36 weeks of age) fed a normal diet. This lesion was investigated using phase-contrast CT; HE, Sudan-III, and collagen (Masson's trichrome) staining; and anti-macrophage (MOMA-II) and anti-smooth muscle (1A4) immunohistochemistry. Scale bars indicate 100 μm ; original magnification, $\times 100$. The white arrow indicates a low $d\delta$ and mass density area in the CT image. The corresponding Masson's trichrome staining shows low collagen content in the same area (black arrow).



A representative atherosclerotic lesion in the aortic sinus of the ApoE-KO mouse (12 weeks of age) fed a high cholesterol diet for eight weeks. This lesion was investigated using phase contrast CT; HE, Sudan-III, and collagen (Masson's trichrome) staining; and anti-macrophage (MOMA-II) and anti-smooth muscle (1A4) immunohistochemistry. Scale bars indicate 100 μm ; original magnification, $\times 100$. The arrowheads indicate a thin fibrous cap (15–20 μm thick) consisting of smooth muscles (positively stained by 1A4) and collagen (positively stained by Masson's trichrome).



The mean $d\delta$ values and specific mass densities of the various components of atherosclerotic plaques. $d\delta$ is proportional to the specific mass density (ρ), which is estimated using the following formula: $\rho = (d\delta + \delta_w)/\delta_w$, where the refractive index of water (w) is $1 - \delta_w$ ($\delta_w = 74.0 \times 10^{-8}$). *, $P < .05$; †, $P < .01$. The lipid area shows a low $d\delta$ ($0.79 \pm 0.13 \times 10^{-8}$) and mass density (1.011 ± 0.001766 g/ml). The smooth muscle and collagen areas show high $d\delta$ ($4.18 \pm 0.10 \times 10^{-8}$ and $5.93 \pm 0.13 \times 10^{-8}$, respectively) and mass density (1.057 ± 0.001407 g/ml and 1.08 ± 0.001794 g/ml, respectively).

X線 Talbot 干渉計の実用化に向けて

百生敦¹、武田佳彦¹、矢代航¹、野田大二²、服部正²

¹ 東京大学大学院新領域創成科学研究科

² 兵庫県立大学高度産業科学技術研究所

1. はじめに

1990年代前半よりX線透視画像における位相コントラストの利用研究が注目されるようになった[1]。シンクロトロン放射光の発達とデジタル画像検出器の進歩はそれを支えた重要な要素となった。

位相コントラストを得るためには波としてのX線の波面が揃っていることが要求される。シンクロトロン放射光施設ではそのようなX線を十分な強度で得ることができ、X線結晶干渉計を用いる方法、アナライザ結晶を用いる方法、および伝播による輪郭強調コントラスト*を利用する方法など、多くの方法が研究されている。X線位相コントラストを利用することの利点は、弱吸収物体に対して高感度観察が可能となるからである。特別な造影処理を行っていない試料の観察結果が多く報告されている。位相シフトの定量計測も可能となっており、それに基づく三次元観察（X線位相トモグラフィ）も実現されている。筆者はそのようなX線位相情報に基づくイメージング技術を包括的にX線位相イメージングと呼んでいる。

生体軟組織や高分子材料などに対するX線位相イメージングの高い感度は、実用的側面からも魅力的であるため、よりコンパクトなX線源を用いる装置化も早くから期待されている。しかし、必ずしもそれが進捗しているとは言えない。まず、結晶を使う方法では単色平面波を扱う必要があり、イメージングに十分な強度を確保するためにはシンクロトロン放射光を用いる以外に解がない状況である。微小フォーカスX線源を用いれば輪郭強調コントラストは生成するので、マイクロフォーカスX線源を用いた透視装置や、乳癌診断装置[2]にその効果が利用されている。しかし、X線位相情報を十分に活用するには至らない。

我々は2枚の透過格子を用いるX線 Talbot 干渉計を開発し、これをX線位相イメージングに利用できることを示してきた[3,4]。バンド幅の広いコーンビームが使用できるという特徴があり、放射光位相イメージングの新しいアプローチであると同時に、コンパクトなX線源でも実現可能であるので、実用の観点からその発展が期待されている。

2. X線 Talbot 干渉計

X線 Talbot 干渉計の構成を図1に示した。被写体を透過したX線を、さらに2枚のすだれ状のX線格子を通して観察する構成を持つ。これにより、被写体がX線を屈折させる効

* 国内ではこれが屈折コントラストと呼ばれているが、物理的には正確ではなく外国でも *refraction contrast* とはあまり呼ばれない。混乱・誤解があるようなので注意が必要である。

果が可視化される。具体的には、屈折角の分布（言い換えれば位相シフトの微分）によるコントラストが検出される。これにより、弱吸収構造体を可視化する仕組みである。

X線 Talbot 干渉計は、X線格子を使う方法であるゆえに、準単色（エネルギーバンド幅の広い）のコーンビームで動作するので、X線利用効率の高い、すなわちスループットの高い位相撮像光学系であるといえる。したがって、小型のX線源との融合が比較的容易であり、実用化に近い魅力的な方式であると期待される。また、位相シフトの定量計測が可能であり、X線CTの原理による三次元観察（X線位相CT）も可能であるという特徴がある。

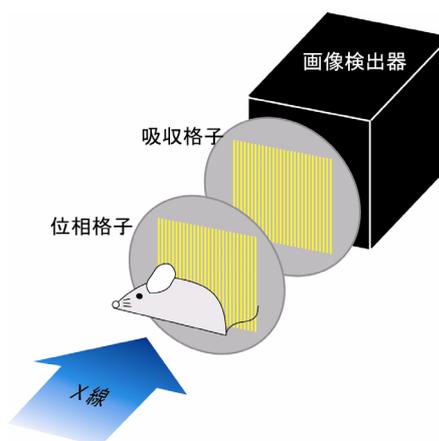


図1 X線 Talbot 干渉計の構成

X線格子はその機能を発揮させるためには高いアスペクト比を持つすだれ構造を有する必要がある。空間的干渉性を保つための要請から格子のピッチは数 μm 程度とされるが、吸収係数の大きい金を用いたとしてもX線を十分に遮るためには数十 μm の厚さが必要であるからである。我々はそのようなX線格子をX線リソグラフィと金鍍金により製作している。兵庫県立大学において、NewSubaruのLIGA用ビームラインを用い、周期 $5.3\mu\text{m}$ で、最大で 10cm 角の面積を有するX線格子の製作を行っている。

3. X線 Talbot 干渉計による位相イメージング

3.1 シンクロトロン放射光の活用

シンクロトロン放射光は高い空間的干渉性を有するので、X線 Talbot 干渉計の動作に好ましいことは言うまでも無い。図2はラット尻尾の位相CTによる観察例[4]であり、骨を含む試料において、軟組織（軟骨、筋肉、靭帯、皮膚組織）が描出できている。面積の大きいX線格子を用いた観察例として図3を示す。厚い被写体において軟骨の描出能を探るために手羽を観察したものである。このような観察は、放射光イメージング技術として高精細三次元観察や動物実験などへの発展が考えられる一方、後で議論するコンパクトX線源を用いた装置化を考える際の基礎データとして極めて重要である。

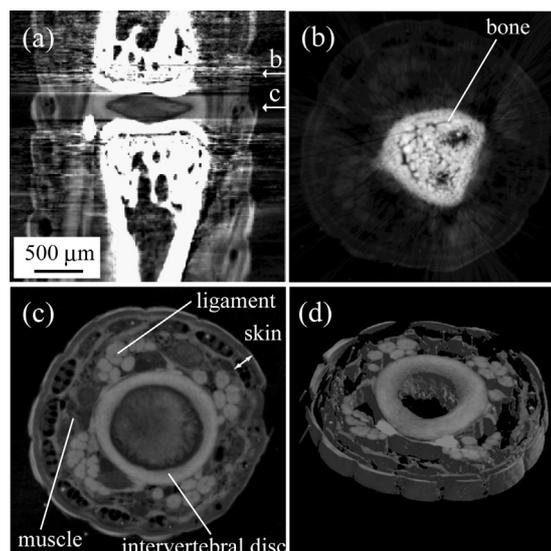


図2 ラット尻尾の位相CT像。sagittal section(a)にaxial sectionの位置(b,c)の位置を示す。(d)は関節部分の3Dレンダリング像。

シンクロトロン放射光を用いて展開できる先端画像計測のひとつがX線顕微鏡の構築である。我々は結像型X線顕微鏡に Talbot 干渉計を融合させ、微分位相感度を付与する試みを進めている。X線 Talbot 干渉計による位相イメージングの高分解能化の試みと表現することもできる。詳細は本プロシーディングスの武田の項[5]を参照願いたい。

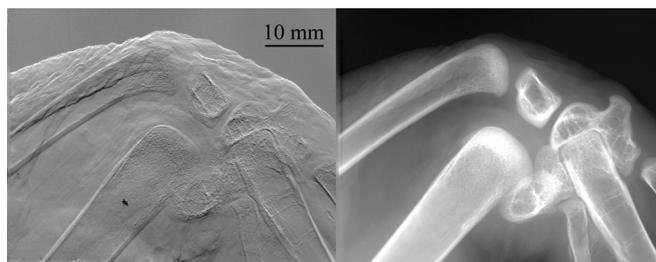


図3 シンクロトロン放射光で撮影した手羽の微分位相像（左）と吸収像（右）。

もうひとつ、シンクロトロン放射光を用いて目論んでいる展開が、高速X線位相イメージング技術の開発である。X線 Talbot 干渉計は、透過格子のみを用いているために、広いエネルギーバンド幅のX線に対して



図4 マイクロフォーカスX線源（Wターゲット）で撮影した手羽の微分位相像（左）と吸収像（右）。

機能する。実験的には、W ターゲットのマイクロフォーカス線源からの連続X線を用いても Talbot 干渉計に由来するコントラストが発生することを確かめている。そこで、本来白色光であるシンクロトロン放射光をそのまま（あるいは適当なフィルターを通して）使用してもコントラストが発生することが予想される。その際、極めて強いX線が使えるので、1 ms 以下の動きであってもX線位相イメージングが撮影可能となる。生きた生体の動きや、高分子材料などにおける動的变化（相分離、結晶化、相転移、化学変化、拡散、等）を可視化する全く新しい技術と成り得る。予備的な撮像実験では 1ms での微分位相像の撮影に成功している。

3.2 コンパクトX線源による装置化

X線 Talbot 干渉計では格子の周期程度の空間的コヒーレンス長を持つX線が必要であり、シンクロトロン放射光以外ではマイクロフォーカスX線源がその要件を満たす。図4には手羽の観察結果を図3に対応して示した。ただし、長時間（数十分）の露光を有したので、被写体の乾燥による像変化を避けるために水中で撮影した。X線源にはフォーカスサイズ $8\mu\text{m}$ の浜松ホトニクス製マイクロフォーカスX線源（L9181）を用いた。50 kV、120 μA でオペレートした W ターゲットからの連続線を用いた。露光量は約 50mGy である。この条件で図4のようにコントラストが得られていることは特筆に値するであろう。

補足だが、被写体は位相格子の直前に配置したが、試料を線源近くに設置すれば、像は拡大投影される。すなわち、位相感度のある拡大投影型X線顕微鏡の構成も可能であることを付記する。

3.3 Talbot-Lau 干渉計への発展

Talbot 干渉計にはコヒーレント照明が必要であるが、さらに発展させて、インコヒーレント照明で機能する X 線 Talbot-Lau 干渉計に注目が集まっている。マイクロフォーカス X 線源ではなく通常フォーカス X 線源が使えることを意味しており、マイクロフォーカス X 線源が抱える強度上の欠点が克服される。実用化への見通しがおおいに立つ。

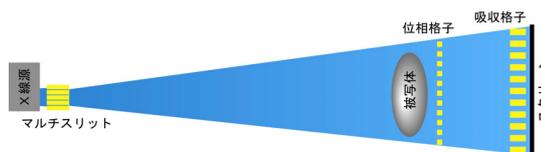


図5 X 線 Talbot-Lau 干渉計の構成。

X 線 Talbot-Lau 干渉計の構成を図5に示す。X 線源近くにマルチスリットを設け、X 線 Talbot 干渉計と組み合わせるものである。マルチスリットの個々のスリットを通る X 線はそれぞれコヒーレントであり、下流の X 線タルボ干渉計を動作させる。それぞれ生成されるモアレ縞が1周期ずれて重なるようにマルチスリットの間隔を決めておくことにより、X 線タルボ干渉計の原理による位相情報検出が可能となる。個々のスリット間ではインコヒーレントであって構わず、すなわち、いかなる X 線に対しても機能する。

我々は病院で使用されている仕様の X 線源（日立メディコ製、Mo 回転陽極型、0.3mm フォーカス）と X 線 Talbot-Lau 干渉計を組み合わせ、数秒の露光で微分位相像が撮影できることをプラスチック球ファントムで検証したところである。現在、この原理に基づく医用画像機器（リウマチ診断装置および乳癌診断装置）の開発を進めている。

4. おわりに

X 線 Talbot 干渉計および X 線 Talbot-Lau 干渉計による位相イメージング技術開発の現状を紹介した。Talbot 型 X 線結像顕微鏡や ms 高速位相イメージングなどのシンクロトロン放射光利用の今後の開発課題に触れた一方、病院内での実用化も見渡せる医用診断装置の開発について述べた。

謝辞

本研究は、科学技術振興機構、先端計測分析技術・機器開発事業、および一部厚生労働科研費の補助により行った。放射光利用実験は、KEK-PF（2007G089）および SP-8（2005A0326）による。

参考文献

- [1] A. Momose, *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** (2005) 6355-6367.
- [2] Konica Minolta Technology Report Vol. 2 Jan. pp. 30-52 (2005).
- [3] A. Momose *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) L866-L868.
- [4] A. Momose *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45** (2006) 5254-5262.

X線屈折コントラスト法によるチタン中の水素の拡散係数の決定

島根大学総合理工学部
金沢大学医学部

水野 薫
岡本博之

1. はじめに

水素と金属の相互作用の解明は金属学の主要な研究テーマのひとつであり、古くは水素脆化による鋼鉄の破断の問題から近年は水素吸蔵合金の開発を目指した研究まで多数の研究が行われている。このような基礎から応用までの広範囲にわたる研究において、金属中の水素または水素化物の直接観察の手段は皆無に等しかった。すなわち、従来のX線吸収コントラスト法はもとより、電子顕微鏡を用いても特殊な場合を除き、観察することは不可能であった[1]。

最近、放射光の利用によりX線屈折コントラスト法が医学利用を中心に進展し、X線結晶学の専門家でなくてもこの方法を用いることができるような状況が実現している。そこで、構造材料、機能材料の両方面において高度の利用が期待されているチタンを用いて、X線屈折コントラスト法で水素化物(TiH_2)の直接観察を試みた。まず高度なX線光学系を必要としない伝播による方法[2]により、水素焼鈍したチタンおよび電解チャージ法により表面に水素化物を形成させたチタン試料の断面の観察を行い、直接観察が可能であることを明らかにした[3]。しかし、この方法では屈折像と吸収像の分離が難しい欠陥が試料の圧延、成型等の前処理において発生したことが確認された。つまり金属試料においては定量的な解析に際して困難な点の存在が予想されるため、アナライザーを用いる方法(X-ray diffraction-enhanced imaging 法) [4]で直接観察を行い、この方法でも水素化物の観察が可能であることを確かめた[5]。さらにこの観察結果の定量的な解析を行い、物理量の決定が可能であることを明らかにしたのでその結果について報告する[6]。

2. 実験方法

本研究で用いた試料は純度 99.99at% のチタン多結晶である。試料のサイズは $5 \times 10 \times 1$ mm 程度である。まず 850°C で1時間真空焼鈍を行った。次に電解チャージにより表面に水素化物を生成させた。電解チャージは1規定の硫酸中で $5\text{mA}/\text{mm}^2$ の電流密度で 6, 12, 18, 24, 48, 150, 250h 時間行った。チャージ温度は 31, 68, 98°C のいずれかである。電解チャージの後に断面を観察できるように 1mm 厚に切り出した。

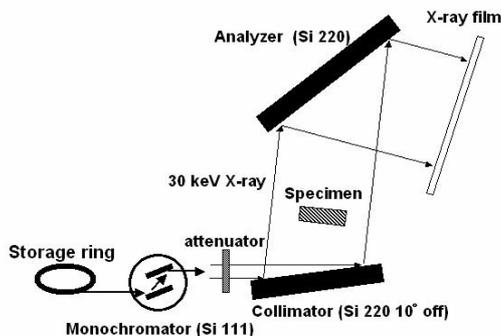


図1. 実験装置

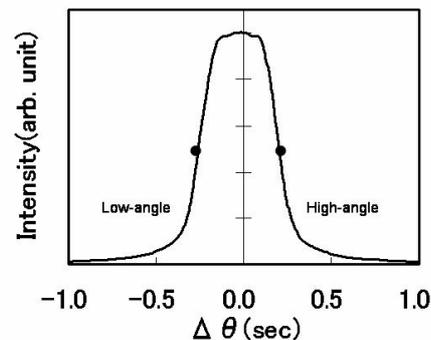


図2. ロッキングカーブ

アナライザーを用いる方法によるX線屈折写真の撮影はKEK-PFのBL-14Bで行った。実験装置の配置を図1に示す。垂直ウイグラーからの白色X線をモノクロメータで10keVの単色X線にしたのち、1mm厚のアルミニウム板で基本波を吸収し、3倍高調波の30keV X線を得た。その後、コリメータ結晶(Si, 440, 10° off)でビームサイズを拡大した。試料を透過したX線をアナライザー結晶(Si, 440)で回折した後にX線フィルム(Kodak, Min-R2000)で撮影した。撮影時間は2, 3分を要した。撮影に際して、X線ビームが必ず試料表面に垂直に入射するように試料を調節した。また、水素化物層が薄い試料を観察できるように、非対称反射を行えるアナライザー結晶(Si, 220, 10° off)を用いた撮影も行った。

3. 実験結果と考察

図2に試料を透過後にアナライザーで回折したX線のロッキングカーブを示す。撮影条件はこのロッキングカーブにおいて黒丸で示してある。すなわち、ピーク位置から低角側には0.30", 高角側には0.25"のoffset位置で撮影した。図3に水素をチャージする前の試料(a, b)と31°Cで18時間チャージした試料(c, d), さらに31°Cで48時間チャージした試料(e, f)の断面の屈折コントラスト写真を示す。図中のLとHは図2で示した低角, 高角側で撮影した写真を意味する。図3(c), (d), (e), (f)では試料の両端に白または黒の縦筋が見られる。これは表面に存在する水素化物による像である[5]。そのため、チャージ時間が長い試料ほど表面からより深い場所に縦筋が観察される。もちろん水素化物が形成されていない図3(a), (b)には縦線は見られない。次に図3(e), (f)の水平な白線に沿って黒化度を測定した結果を図4に示す。このグラフには屈折だけでなく、吸収の効果も含まれているため、低角側のグラフと高角側のグラフの差を取った。低角側と高角側の像のX線強度をそれぞれ I_L と I_H とすると、正味の屈折X線の強度 ΔI は次式で与えられる。

$$\Delta I = I_L - I_H \quad (1)$$

この結果を図5に黒丸, 白丸または三角で示す。ただし, 図5には6, 18時間チャージした試料の結果も示してある。

チタン水素化物中の水素の拡散係数を決定するために, 図5に示した結果とモデル計算したX線強度を比較した。モデル計算では水素の分布状況から屈折率分布を求め, さらにスネルの法則から屈折角を求め, 最後にロッキングカーブからX線強度を計算した。以下順を追って説明する。

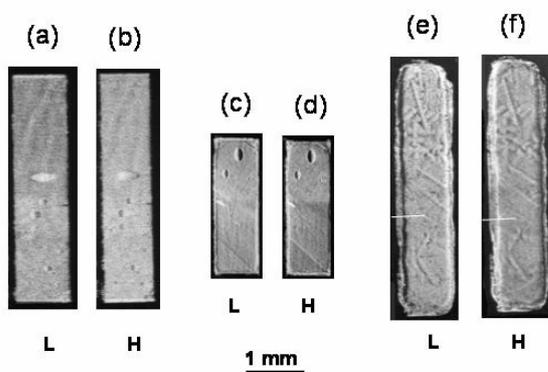


図3. 屈折コントラスト写真

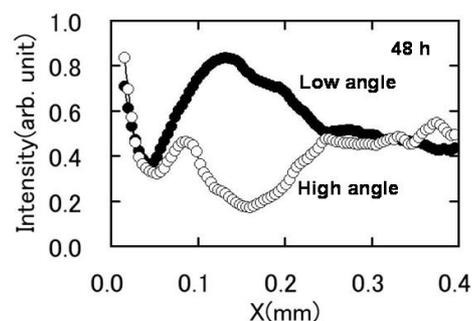


図4. X線の強度分布

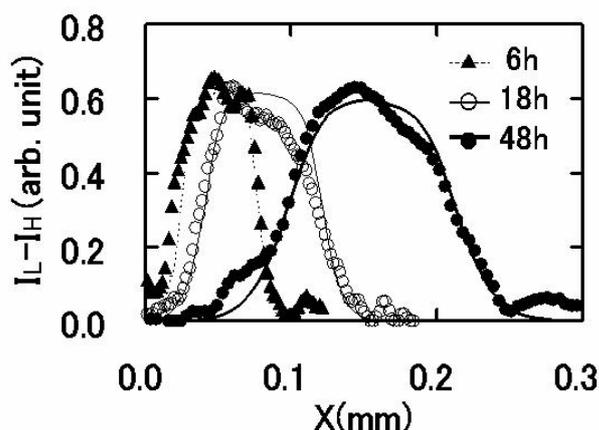


図5. 屈折X線の強度分布

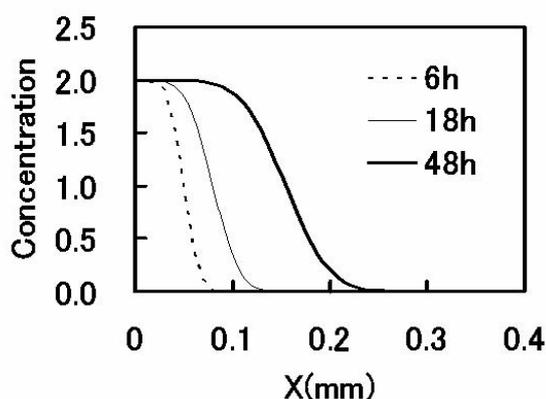


図6. 水素化物の分布

水素のチタンに対する溶解熱は負である。そのため、表面に付着した水素は容易くチタン中に侵入する[7]。さらにチタン中の水素の拡散の活性化エネルギーは 0.49eV と大きく、拡散速度は遅い[8]。また、チタン水素化物の形成エネルギーも負であるため、チタンに出会った水素は直ちに水素化物を形成する[7]。従って、拡散した水素の分布をそのまま水素化物の分布と見なすことが可能である。そこで表面濃度が一定である場合の一次元の拡散方程式の解を用い、さらに拡散係数 D を仮定して水素の分布を計算した。次式により規格化された水素濃度 c/c_0 が求められる。

$$\frac{c}{c_0} = 1 - \operatorname{erf}\left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}}\right) \quad (2)$$

ここで $\operatorname{erf}(x)$ は誤差関数、 t はチャージ時間、 x は表面からの深さである。計算結果の一例を図6に示す。そしてこの分布を水素化物の分布と見なし、屈折率の分布を求めた。さらにスネルの法則を用いて屈折角を計算し、さらに図2に示したロッキングカーブから屈折X線の強度分布を計算した。拡散係数を変化させていくつもの強度プロファイルを計算し、測定したX線強度のグラフの形状と良く一致する拡散係数を決めた。一番フィットした結果を図4中に実線と点線で示す。このようにして決定した水素の拡散係数を5つの異なるチャージ時間に関してグラフに示したのが図7である。この図から、 $304\text{K}(31^\circ\text{C})$ における拡散係数 $D = 3.5 \times 10^{-15} \text{m}^2/\text{s}$ が求まった。

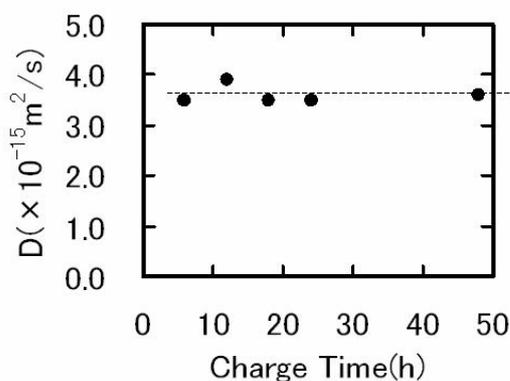


図7. 拡散係数(304K)

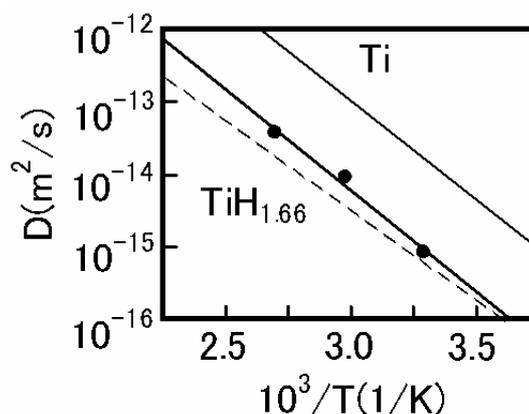


図8. 拡散係数のアレニウスプロット

対称反射アナライ
ザーによるDEI像

非対称反射アナライ
ザーによるDEI像

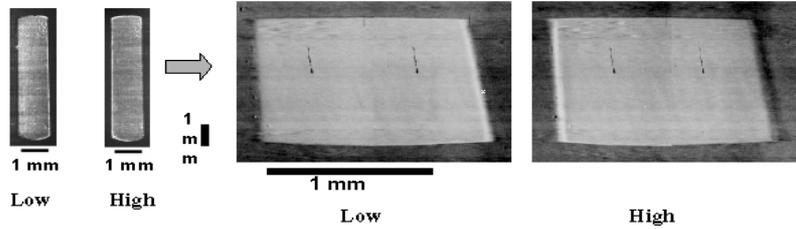


図9. 非対称反射アナライザーにより拡大した写真

異なる温度でチャージした試料に関しても同様にして、拡散係数を決定した。これらの結果をアレニウスプロットにしたグラフを図8に示す。この図からチタン水素化物中の水素の拡散係数として、

$$D(T) = 2 \times 10^{-7} \exp\left(\frac{0.55 \pm 0.07 \text{ eV}}{kT}\right) \text{ m}^2/\text{s} \quad (3)$$

が得られた。図8には従来報告されている純チタンと $\text{TiH}_{1.66}$ 中の水素の拡散係数も示してある[6][7]。これらの値と比較しても、今回の結果は良い一致を示している。

なお、本実験で用いた装置では水素化物層の厚さが $100 \mu\text{m}$ 程度以上ないと分解能の関係で強度分布を測定できなかった。そこで薄い層でも強度分布が測定できるように、アナライザー結晶で非対称反射させ、一次元的に拡大された像を撮影する試みを行った。拡大した写真を図9に示す。非対称因子が0.11であるため、約9倍に拡大されている。この改良により $10 \mu\text{m}$ 程度の厚さがあれば、本解析方法が適用できる事が分かった。

以上の結果からX線屈折コントラスト法で得られた結果は物理定数を決定するような定量的な解析に耐える精度を有していることが確認できた。従って鉄の侵炭のような表面での拡散に関係した研究にもこの手法を適用して定量的な解析により物理量を決定できる可能性が明らかになった。

参考文献

- [1] K. Aoyagi, E. P. Torres, T. Suda, S. Ohnuki: J. Nuclear Materials **283-287** (2000) 876.
- [2] N. Yagi, Y. Suzuki, K. Umetani, Y. Kohmura and K. Yamasaki: Med. Phys. **26**(1999) 2190.
- [3] K. Mizuno, H. Okamoto, K. Kajiwara and Y. Furuya : Materials Transaction **47** (2006) 1299.
- [4] D. C. Chapman, W. Thomlinson, R. E. Johnston, D. Washburn, E. Pisano, N. Gmur, Z. Zhang, R. Menk, F. Arfel and D. Sayers: Phys. Med. Biol. **42** (1997) 2015.
- [5] K. Mizuno, T. Kobayashi, F. Fujiki, H. Okamoto, Y. Furuya and K. Hirano, J. Alloys & Compounds **402** (2005) 109.
- [6] K. Mizuno, Y. Furuya, K. Hirano and H. Okamoto, Phys. Stat. Sol. (a) **204** (2007) 2734.
- [7] Y. Fukai, The Metal-Hydrogen System (Springer, New York, 1993).
- [8] H. Wipf, B. Kappesser and R. Werner: J. Alloys and Compounds **310** (2000) 190.

X線 HARP 検出器の位相型イメージングへの応用

KEK-PF 平野馨一

1. はじめに

KEK 構造生物学研究センター(センター長 若槻壮市教授)と NHK 放送技術研究所(谷岡健吉所長)などが協力して開発を進めている直接変換型 X 線 HARP 検出器は、高精細で感度が高いという優れた特徴を持っており、特に生体超高分子構造機能解析への応用に大きな期待が寄せられている。この他にも X 線 HARP 検出器が活躍する分野は多く考えられるが、その中でも特に有望と考えられるのが X 線イメージングである。

X 線イメージングは、1895 年のレントゲンによる X 線の発見と共に研究が始まり、過去約百年の間に、医療や工業などの分野で広く利用されるようになった。X 線イメージングは光源や検出器の進歩に支えられて今日まで発達してきたが、その普及を著しく促したのが 1968 年の G. N. Hounsfield による X 線 CT (Computed Tomography) の発明であった。これにより物質内部を非破壊的に三次元観察することが可能となり、医療機関では患者の診断のために、工業分野では材料の非破壊検査などのために活用されるようになった。

こうした従来の X 線イメージングでは、試料による X 線の吸収を利用して画像を形成する(吸収型 X 線イメージング)。これに対して、特に 1990 年代後半以降、X 線の位相情報を利用する新しい撮像法一位相型 X 線イメージングが急速に発達しつつある。この位相型 X 線イメージングは吸収型より遙かに感度が高いため、従来は観察できなかった試料でも観察することができ、試料への照射線量を大幅に減らすことができる。Photon Factory (PF) ではこれまで、特に X 線干渉計やアナライザー結晶を利用するタイプの位相型イメージング研究で世界をリードする成果を挙げてきた。そこで本研究では、これら PF の独自技術と X 線 HARP 検出器とを組み合わせることにより、さらなる感度の向上を目指して評価実験などを行った。

2. 直接変換型 X 線 HARP 撮像管検出器について

X 線 HARP 検出器の開発は、可視光用 HARP 検出器[1]に改造を加えることによって行った。開発した X 線 HARP 検出器の一例を図 1 に示す。ベリリウム面板を透過した X 線は、厚さ 15 μm のアモルファスセレン (a-Se) 光電膜に入射して電子・ホール対を生成する。このとき a-Se 光電膜におよそ 80V/ μm 以上の高電界を印可すると、アバランシェ効果により電荷が増幅される。X 線 HARP 検出器では、この電荷増倍を利用することにより感度を向上させることができる。ちなみに HARP という言葉は NHK 放送技術研究所の谷岡所長の命名によるものであり、High-gain Avalanche Rushing amorphous Photoconductor の略である。 a-Se 光電膜 (HARP 膜) 内ではホールの移動度の方が電子よりも高いため、映像信号にはホール電荷を利用する。HARP 膜の陰極側に蓄積されたホール電荷を、電子

銃から放出された電子ビームで走査することにより、映像信号を得ることができる。電子源として冷陰極アレイを用いるタイプのX線 HARP 検出器もすでに開発されている。

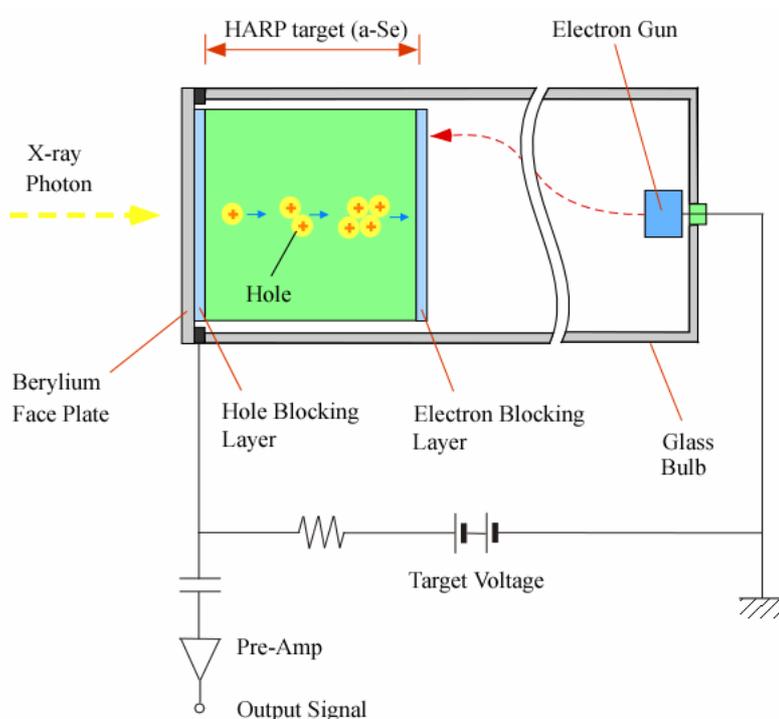


図 1 X線 HARP 撮像管検出器

X線 HARP 撮像管検出器の仕様を表 1 に示す。映像信号の増幅率 G を測定したところ、印可電圧 V が 1150 V のときを 1 とすると、 $V = 1300\text{ V}$ では $G = 2$ 、 $V = 1400\text{ V}$ では $G = 4$ 、 $V = 1500\text{ V}$ では $G = 12$ 、 $V = 1550\text{ V}$ では $G = 20$ であった。

| | |
|---------------------|--|
| Pixel size | 15.4 μm (H) x 8.1 μm (V) |
| Number of pixels | 960(H) x 1100(V) |
| Frame rate | 30 fps |
| HARP film thickness | 15 μm |
| Image area | 15 mm(H) x 9 mm(V) |
| Image format | 16-bit TIFF |
| Output | HDTV (1125 scanning lines) |

表 1 X線 HARP 撮像管検出器の仕様

3. 直接変換型 X 線 HARP 撮像管検出器の位相マップ測定への応用 [2]

X 線 HARP 検出器の X 線位相イメージングへの応用としては、X 線干渉計による位相マップ計測や、角度分解 X 線イメージング（回折強調撮像法、DEI）による屈折像の取得実験などを行った。ここでは前者について報告する。

PF の BL-14B で行った実験配置を図 2 に示す。X 線はまずビームラインの Si(111) 二結晶分光器で波長 0.766 \AA に単色化され、実験ステーションに入射する。入射 X 線は非対称 Si(220) コリメーター結晶で水平方向に拡大された後、LLL 型の X 線干渉計に入射する。X 線は干渉計内で二本のコヒーレントなビームに分かれるので、一方に試料としてラットの肝臓、他方に縞走査用の位相板を挿入した。干渉計を出射したビーム（H 波）の干渉縞を X 線 HARP 検出器で観察し、試料の位相マップを算出した。なお X 線 HARP 検出器は増倍率が約 2 となるよう、膜電圧を 1300 V に設定した。

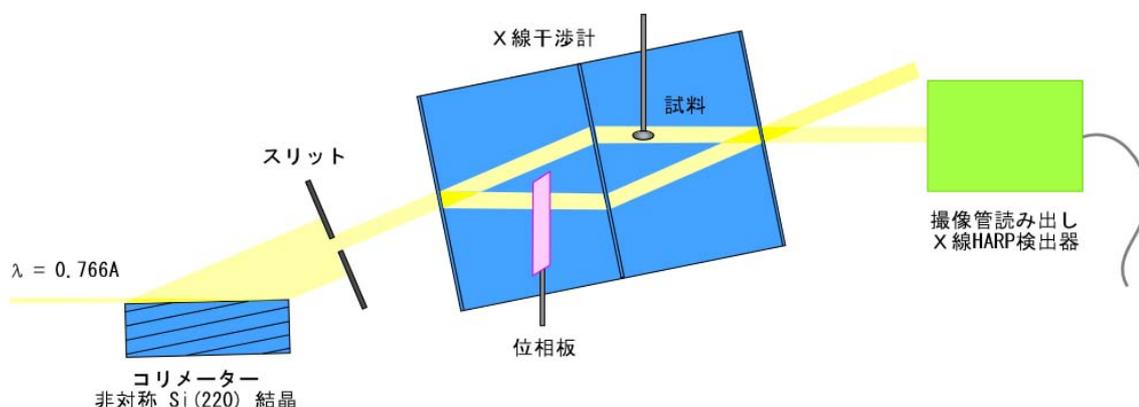


図 2 位相マップ計測実験の実験配置

得られた位相マップを図 3 に示す。X 線の位相シフトは 50° から 200° の範囲にわたって分布している。特筆すべきは、造影剤を使っていないにもかかわらず、ラット肝臓内の毛細血管が鮮明に見えている点である。これらの血管の画像から検出器の空間分解能を評価したところ、垂直方向では $36 \mu\text{m}$ 、水平方向では $100 \mu\text{m}$ よりも良いことが確認された。この実験結果から、X 線 HARP 検出器は位相マップ計測に十分な性能を持っており、生体組織の無造影観察に威力を発揮することが示された。

4. おわりに

本稿では、X 線 HARP 検出器の位相マップ測定への応用について報告した。実験では増倍率をやや低めに設定したが ($G = 2$)、さらに高く設定すれば露光時間を短縮して試料への照射線量を低減することができるはずである。実際、角度分解 X 線イメージング実験では、感度向上による画質の改善が確認されており、この予測の正しさを裏付けている。

今後のX線 HARP 検出器のさらなる発展に期待したい。

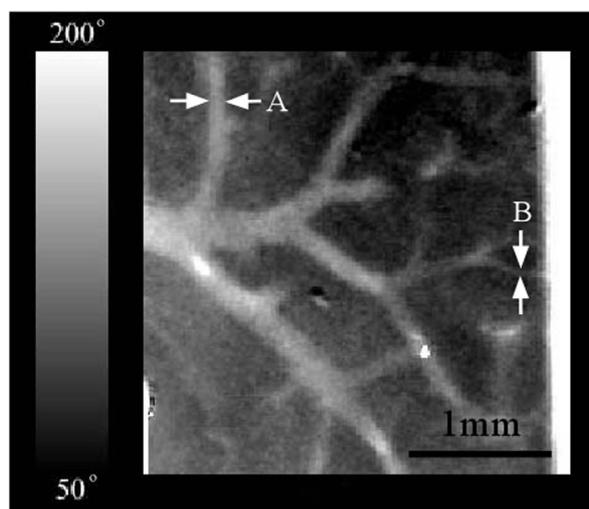


図3 ラット肝臓の位相マップ

謝辞

本研究は PF・若槻壮市教授のプロジェクト「X線 HARP を用いた生体超高分子構造機能解析装置」(JST 先端計測分析技術・機器開発事業)の一環として行われました。また共同研究者として以下の方々の協力をいただいています(敬称略):三好敏喜(PF)、五十嵐教之(PF)、武田徹(筑波大)、呉勁(筑波大)、Thet-Thet-Lwin(筑波大)、谷岡健吉(NHK 技研)、江上典文(NHK 技研)、久保田節(NHK 技研)、河合輝男(NHK エンジニアリングサービス)。この場を借りて改めて御礼申し上げます。

参考文献

- [1] 谷岡、平井: 応用物理 **71** (2002) 1376.
- [2] K. Hirano *et. al.*: Phys. Med. Biol. **52** (2007) 2545.

5. 参加者リスト 五十音順

- 青木貞雄（筑波大学数理物質科学研究科教授）
e-mail:aoki@bk.tsukuba.ac.jp
- 足立伸一（KEK-PF 准教授）
e-mail:shinichi.adachi@kek.jp
- 飯田厚夫（KEK-PF 教授）
e-mail:atsuo.iida@kek.jp
- 池浦広美（産業技術総合研究所主任研究員）
e-mail:ikeura-sekiguchi@aist.go.jp
- 伊藤 敦（東海大学工学部教授）
e-mail:aeito@keyaki.cc.u-tokai.ac.jp
- 伊藤 司（コニカミノルタエムジー株開発センター I S G 課長研究員）
e-mail:tsukasa.ito@konicaminolta.jp
- 伊藤英之助（キヤノン株式会社キヤノン先端融合研究所薄膜デバイス研究室）
e-mail:itoh.hidenosuke@canon.co.jp
- 井上敬文（株式会社カネボウ化粧品基盤技術研究所主任研究員）
e-mail:inoue.takafumi@kanebocos.co.jp
- 今田 彩（キヤノン株式会社）
e-mail:imada.aya@canon.co.jp
- 岩住俊明（KEK-PF 准教授）
e-mail:toshiaki@iwazumi@kek.jp
- 上野智裕（大阪大学）
- 大東 琢治（JASRI/SPring-8 協力研究員）
e-mail:ohigashi@spring8.or.jp
- 沖津康平（東京大学工学系研究科）
e-mail:okitsu@soyak.t.u-tokyo.ac.jp
- 小野寛太（KEK）
e-mail:kanta.ono@kek.jp
- 籠島靖（兵庫県立大学大学院物質理学研究科教授）
e-mail:kagosima@sci.u-hyogo.ac.jp
- 釜地義人（兵庫県立大学学士過程 4 年）
e-mail:ykamaji@lasti.u-hyogo.ac.jp
- 河田洋（KEK-PF 教授）
e-mail:hiroshi.kawata@kek.jp

岸本淳生（兵庫県立大学大学院工学研究科修士課程 1 年）
e-mail:junki@lasti.u-hyogo.ac.jp

木下博雄（兵庫県立大学）
e-mail:kinosita@lasti.u-hyogo.ac.jp

清原淳子（コニカミノルタエムジー株式会社）
e-mail:junko.kiyohara@konicaminolta.jp

金城康人（都立産業技術研究センター）
e-mail:kinjo.yasuhito@iri-tokyo.jp

久保田正人（KEK-PF）

小出常晴（KEK-PF）

幸田勝博（富士フイルム先端コア技術研究所主席研究員）
e-mail:katsuhiko_kouda@fujifilm.co.jp

香村芳樹（理研播磨石川 X 線干渉光学研究室）
e-mail:kohmura@spring8.or.jp

澤博（KEK-PF）

篠原正和（神戸大学大学院医学系研究科循環器内科学医学研究員）
e-mail:shinodoc@med.kobe-u.ac.jp

篠原祐也（東京大学）
e-mail:shinohara@x-ray.k.u-tokyo.ac.jp

篠原邦夫（早稲田大学理工研）

島雄大介（茨城県立医療大学 保健医療学部助教）
e-mail:shimao@ipu.ac.jp

杉山弘（KEK-PF）
e-mail:hiroshi.sugiyama@kek.jp

鈴木芳生（JASRI 利用研究促進部）
e-mail:yoshio@spring8.or.jp

高倉 樹（東京大学工学部学部 4 年）
e-mail:takakura@mml.k.u-tokyo.ac.jp

高橋幸生（大阪大学大学院工学研究科フロンティア研究センター）
e-mail:takahashi@prec.eng.osaka-u.ac.jp

高橋由美子（日本大学理工学部理工学研究所上席研究員）
e-mail:yumikot@lebra.nihon-u.ac.jp

竹内晃久（JASRI 利用研究促進部門研究員）
e-mail:take@spring8.or.jp

武田佳彦（東京大学大学院新領域創成科学研究科産学官連携研究員）
e-mail:takeda@mml.k.u-tokyo.ac.jp

竹中久貴 (NTT アドバンステクノロジー株式会社ナノプロセッシング事業ユニット)

e-mail: talemala@ibaraki.ntt-at.co.jp

竹谷 敏 (産業技術総合研究所主任研究員)

e-mail: s.takeya@aist.go.jp

谷克彦 (リコー中央研究所)

e-mail: tanidr@yahoo.co.jp

張小威 (KEK-PF)

e-mail: zhang.xiaowei@kek.jp

辻 卓也 (兵庫県立大学大学院物質理学研究科 D1)

e-mail: rk07m003@stkt.u-hyogo.ac.jp

並河一道 (東京学芸大学教授)

e-mail: namikawa@u-gakugei.ac.jp

西野吉則 (理研播磨)

e-mail: nishino@spring8.or.jp

林 好一 (東北大学准教授)

e-mail: khayashi@imr.tohoku.ac.jp

東保男 (KEK-MEC)

平野馨一 (KEK)

e-mail: keiichi.hirano@kek.jp

福田一徳 (キヤノン株式会社先端解析研究部)

e-mail: fukuda.kazunori@canon.co.jp

星野真人 (筑波大学)

e-mail: hoshino@aokilab.bk.tsukuba.ac.jp

本田 凡 (コニカミノルタエムジー(株)開発センター顧問)

e-mail: chika,honda@konicaminolta.jp

本田捷夫 (千葉大学大学院融合科学研究科教授)

e-mail: toshio.honda@faculty.chiba-u.jp

巻渕千穂 (コニカミノルタエムジー株式会社開発センターHI 開発室 ISG)

e-mail: chiho.makifuchi@konicaminolta.jp

松尾光一 (慶応大学医学部准教授)

e-mail: matsuo@sc.itc.ac.jp

松下正 (KEK-PF)

松下雄一郎 (東京大学工学部物理工学科学部 4 年)

e-mail: matsushita@mml.k.u-tokyo.ac.jp

水谷治央 (東京大学総括プロジェクト機構助教)

e-mail: mizutani@cb.k.u-tokyo.ac.jp

水野 薫（島根大学教授）

e-mail: mizuno@riko.shimane-u.ac.jp

向出大平（キヤノン株式会社先端融合研究所研究員）

e-mail: mukaide.taihei@canon.co.jp

村越 大（富士フイルム株式会社 一般）

e-mail: dai_murakoshi@fujifilm.co.jp

百生 敦（東京大学大学院新領域創成科学研究科准教授）

e-mail: momose@exp.t.u-tokyo.ac.jp

森 浩一（茨城県立医療大学教授）

e-mail: mori@ipu.ac.jp

矢代航（東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻助教）

e-mail: yashiro@mml.k.u-tokyo.ac.jp

安本正人（産業技術総合研究所計測フロンティア研究部門主任研究員）

e-mail: m.yasumoto@aist.go.jp

矢田慶治（株式会社東研技術顧問）

e-mail: kyada@tohken.co.jp

矢橋牧名（JASRI）

e-mail: yabashi@spring8.or.jp

山内和人（大阪大学大学院工学研究科）

e-mail: yamauchi@prec.eng.osaka-u.ac.jp

山口公明（キヤノン株式会社）

e-mail: yamaguchi.kimiaki@canon.co.jp

山崎裕史（JASRI 光源・光学系部門副主幹研究員）

e-mail: yamazaki@spring8.or.jp

吉村順一（KEK-PF 研究員）

e-mail: jun-ichi.yoshimura@kek.jp

米山明男（日立製作所基礎研究所）

e-mail: akio.yoneyama.bu@hitachi.com

渡辺紀生（筑波大学）

e-mail: watanabe@bk.tsukuba.ac.jp